SÉRIE : B

N° D'ORDRE : 149

N° DE SÉRIE : 90

THESE

présentée

devant L'UNIVERSITE DE RENNES

U. E. R. STRUCTURE ET PROPRIETES DE LA MATIERE

pour obtenir

Le grade de DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

André DAUDÉ

Contribution à l'étude des propriétés optiques dans l'ultraviolet lointain de couches minces préparées et étudiées sous ultra-vide.

Soutenue le 18 mars 1972 devant la Commission d'Examen

M. S. ROBIN	Président
M. F. ABELES	Examinateurs
M. P. VERNIER	
M. M. A. NUSIMOVICI	

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552708_0008

SÉRIE : B
N° D'ORDRE : 149
N° DE SÉRIE : 90

THESE

présentée

devant L'UNIVERSITE DE RENNES

U. E. R. STRUCTURE ET PROPRIETES DE LA MATIERE

pour obtenir

Le grade de DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

André DAUDÉ

Contribution à l'étude des propriétés optiques dans l'ultraviolet lointain de couches minces préparées et étudiées sous ultra-vide.

UNIV. LEIDEN BIBL.

Soutenue le 18 mars 1972 devant la Commission d'Examen

M. S. ROBIN	Président
M. F. ABELES	Examinateurs
M. P. VERNIER	
M. M. A. NUSIMOVICI	

UNIVERSITE DE RENNES

U.E.R. issues de la FACULTE DES SCIENCES

Doyens Honoraires

M. MILON Y.
M. TREHIN R.
M. SCHMITT M.
M. LE MOAL H.
M. MARTIN Y.
M. BOCLE J.

Professeurs Honoraires

M. FREYMANN R.
M. HAGENE P.
M. POISSON R,
M. ROHMER R.
M. TREHIN R.
M. SALMON-LEGAGNEUR F.
M. des ABBAYES H.
M. MILON Y.

Maîtres de Conférences Honoraires

M. GRILLET L.
M. LECRECQ A.

Mathématiques

Professeurs

Melle CHARPENTIER M.
M. GUERINDON J.
M. METIVIER M.
M. GIORGIUTTI I.
M. BRUNEL A.
M. TOUGERON J.C.

Maîtres de Conférences & Chargés de Cours

M. LEGOUPIL J.
M. HOUDEBINE J.
M. EUVRARD D.
M. LIEUTAUD M.
M. NEDELEC J.C.
M. VERJUS J.P.
M. TRILLING L.
M. KEANE M. (Professeur associé)
M. GILDELAMADRID (Prof. associé)

Physique

M. VACHER M.
M. VIGNERON L.
M. LE BOT J.
Mme ROBIN née SALOMOND
M. ROBIN S.
M. LE MONTAGNER S.
M. MEVEL J.Y.
M. MEINNEL J.
M. REGENSTREIF E.
M. BRUN P.
M. LE ROUX E.
M. DUBOST
M. GUIDINI
M. HAEUSLER C.
M. ARQUES P.Y.
M. DECAMPS E.
M. NUSIMOVICI M.A.

Chimie

M. VENE J.
M. LEVAS E.
M. PELTIER D.
M. PRIGENT J.
M. JOUAN P.
M. FOUCAUD A.
M. LANG J.
M, CARRIE R.
M. GUERILLOT C.
M. KERFANTO M.
M. DABARD R.

M. GRANDJEAN D.
M. LUCAS J.
M. DUVAL J.
M. TALLEC A.

Zoologie

M. RICHARD G.
M. MAILLET P.
M. BOISTEL J.
M. RAZET P.
M. FOLLIOT R.
M. ALLEGRET P.
M. MANIEY J.
M. JOLY J.
M. POSTEL (Professeur associé)

M. LEFEUVRE J.C.

Botanique

M. VILLERET S.
M. CLAUSTRES G.
Melle GOAS M.
Melle GOAS G.

Mme LEMOINE C.
M. TOUFFAIT

Géologie

M. COGNE J.
Melle DURAND S.
M. PHILIPPOT A.

M. BOILLOT G.
M. HAMEURT J.

Le Secrétaire Général de l'Université

M. BOURDIGUEL R.

A mes parents,

A mon épouse,

A mes enfants.

J'exprime ma respectueuse reconnaissance à Monsieur et Madame ROBIN Professeurs à l'Université de Rennes qui m'ont accueilli dans le Laboratoire de Spectroscopie, m'ont conseillé et encouragé durant cette étude.

Je prie Monsieur le Professeur ABELES de l'Université de Paris VI de trouver ici l'expression de ma profonde gratitude pour s'être intéressé à ce travail et avoir accepté de faire partie du jury de cette thèse.

Je remercie Monsieur le Professeur VERNIER de l'Université de Dijon et Monsieur NUSIMOVICI, Maître de Conférences à l'Université de Rennes, d'avoir examiné cette étude.

J'adresse mes sincères remerciements à mes camarades de Laboratoire, en particulier à MM. SAVARY et JEZEQUEL qui m'ont aidé pendant la réalisation de ce travail. Je remercie Mesdames BARBAZA et LEBOULANGER pour les clichés de microscopie électronique, et tous les collaborateurs techniques, MM. GUERINEL, GUICHARD et Mme HASCOAT, sans le concours desquels ce travail n'aurait pu être réalisé.

Une grande partie de mes travaux a été effectuée dans le cadre d'un contrat de recherche passé avec le Centre National des Etudes Spatiales et le Centre National de la Recherche Scientifique. Je remercie les directions de ces organismes pour la confiance qu'ils m'ont accordée.

Je remercie également les Ets RIBER pour le soin qu'ils ont apporté à la réalisation des enceintes à ultravide.

TABLE DES MATIERES

Pages

INTRODUCTION 1

Chapitre I

I.1 - METHODES UTILISEES POUR LA DETERMINATION DES CONSTANTES OPTIQUES 4

I.1.1 - Généralités. Notations 4

I.1.2 - Zone de forte réflexion 7
I.1.2.1. - Méthode à plusieurs angles d'incidence 10
I.1.2.2. - Méthode de Kramers-Kronig..... 11

I.1.3 - Zone de semi transparence 13
I.1.3.1. - Méthode basée sur la composition des indices n_1, $\hat{N}_2$ et $\hat{N}_3$ pour des valeurs θ'_1, θ''_1, θ'''_1 de l'angle d'incidence..... 13
I.1.3.2. - Méthode de l'angle critique..... 17

I.2 - INFLUENCES DES CONDITIONS EXPERIMENTALES 20

I.2.1 - Influences dues à la nature des surfaces 20

I.2.2 - Influences de l'état de la surface 21

I.2.3 - Influences des conditions de préparation 22

I.2.4 - Caractères généraux du dispositif expérimental "souhaitable" 22

Chapitre II

II.1 - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE 24

II.1.1 - Monochromateur 24

II.1.2 - Dispositif de mesures pour la région spectrale comprise entre 1100 et 2500 Å 25
a) Source de rayonnement 25
b) Enceinte intermédiaire 26
c) Réflectomètre 26

II.1.3 - Dispositif de mesures pour le domaine de longueur d'onde compris entre 500 et 1300 Å 29
a) Source ultraviolette fonctionnant avec un gaz sous faible pression 30
b) Enceinte intermédiaire avec pompage différentiel 31
c) Réflectomètre sans fenêtre pour mesures sous ultravide 33

α) Chambre de mesures 33
β) Enceinte d'évaporation 35
γ) Passeur d'échantillons 36

II.2 - PERFORMANCES OBSERVEES 38

II.2.1 - Tenue à la pression 38
a) Pressions totales 38
b) Pressions partielles 39

II.2.2 - Préparation des dépôts 40

II.2.3 - Contrôle des dépôts 40
a) Contrôle d'épaisseur 40
b) Examen de l'aspect superficiel des dépôts 41

II.2.4 - Mesures optiques 42
a) Dispositif muni de fenêtres de fluorure de lithium. 42
b) Dispositif sans fenêtre 43
1°) la source 43
2°) le détecteur 45
3°) le système d'enregistrement 46

Chapitre III

RESULTATS ET INTERPRETATIONS 48

GENERALITES 48

III.1 - ETUDE D'ECHANTILLONS "PLANS ET PROPRES" 49

III.1.1 - Pouvoir réflecteur 49
Aluminium 50
Magnésium 51

III.1.2 - Constantes optiques de Al et de Mg 53
Méthode de l'angle critique 53
Méthode des deux angles d'incidence 56
Méthode de Kramers Kronig 57
Méthode "des compositions d'indices" 58

III.1.3 - Constantes diélectriques de l'Al et de Mg 59
Aluminium 59
Magnésium 63

III.2 - SURFACES RUGUEUSES 67
Résultats expérimentaux 68
1) Aluminium 68
2) Magnésium 69
3) Couches minces d'aluminium déposées sur des surfaces de forte rugosité 71

III.3 - COUCHES MULTIPLES 76

III.3.1 - Vieillissement des couches 76
Aluminium 76
Magnésium 77

III.3.2 - Couches protégées 78
Couche d'Al recouverte de LiF 79
Aluminium recouvert de MgF_2 79

CONCLUSION 83

ANNEXE I - Programme de Kramers Kronig 85

ANNEXE II - Programme pour l'étude de couches multiples 89

ANNEXE III - Calcul du circuit vide du dispositif expérimental . 97

ANNEXE IV - Constante diélectrique 100

ANNEXE V - Influences de la rugosité 111
Diffusion - Cas classique - (Davies - Bennett) 112
Plasmon de surface (théorie de Ritchie) 113

ANNEXE VI - Programme pour évaluer ΔR_1 (Diffusion) 118

ANNEXE VII - Programme pour évaluer ΔR_2 (plasmon de surface) ... 119

BIBLIOGRAPHIE 123

INTRODUCTION

L'étude des propriétés optiques des couches minces (simples ou multiples) présente un double intérêt. Elle permet :

- d'un point de vue pratique, de réaliser des dispositifs de mesures de propriétés connues ou souhaitées,
- d'un point de vue théorique, d'améliorer les connaissances du physicien du solide dans l'étude des structures électroniques ou atomiques des matériaux examinés sous cette forme.

L'interaction du rayonnement électromagnétique (tout au moins dans le domaine d'énergie correspondant au rayonnement U.V., visible et I.R.) et de ces milieux (supposés stratifiés) met en relief le rôle important des surfaces et interfaces. Si l'ultravide apporte une solution technique intéressante aux problèmes d'étude des surfaces propres ou recouvertes d'un adsorbat contrôlé, les phénomènes liés à l'état des surfaces et au comportement du rayonnement en fonction de la longueur d'onde, sur ces surfaces, sont encore mal connus.

Dans ce travail, nous étudions les propriétés optiques dans l'ultraviolet lointain de couches minces réalisées et observées sous ultra-vide. Dans le domaine spectral de mesures correspondant aux longueurs d'onde comprises entre 500 et 2500 Å, la méthode optique de mesure que nous utilisons est basée sur l'évaluation du facteur de réflexion, ou pouvoir réflecteur, des dépôts observés. En vue d'applications pratiques, ou pour des considérations plus théoriques, nous sommes amenés en premier lieu à évaluer les constantes optiques des matériaux étudiés.

Dans la première partie du chapitre I, nous rappelons les méthodes utilisées pour établir les valeurs de ces constantes. Nous avons été conduits à séparer la région spectrale explorée en deux zones.

Dans la première zone, correspondant au domaine de longueurs d'onde supérieures à la longueur critique λ_c des métaux étudiés (Al et Mg), l'analyse des résultats expérimentaux est effectuée à l'aide de deux méthodes connues sous le nom de méthodes de TOUSEY et de KRAMERS KRONIG.

Dans la seconde zone, où ces métaux deviennent beaucoup plus transparents ($\lambda < \lambda_c$), nous avons employé deux autres méthodes : la première, basée sur un développement des relations de FRESNEL en considérant une couche mince absorbante sur un support absorbant, la seconde est une extension de la méthode de l'angle critique dans le cas où la couche mince étudiée présente un indice de réfraction inférieur à l'unité. L'application de toutes les méthodes précédentes suppose que la géométrie des échantillons examinés correspond bien aux modèles théoriques (planéité des surfaces, homogénéité des milieux) utilisés pour décrire à l'aide des équations de MAXWELL et des relations de passages le comportement d'une onde électromagnétique dans les milieux qu'elle traverse.

La deuxième partie du chapitre I est relative à l'influence des imperfections que présentent les échantillons réels par rapport aux modèles théoriques. Nous définissons les conditions expérimentales souhaitables, pour minimiser les défauts produits et négliger ainsi les erreurs qu'ils provoquent, ou pour évaluer leur importance afin d'en tenir compte dans l'analyse des grandeurs mesurées.

Dans le chapitre II, nous décrivons le dispositif expérimental réalisé et les améliorations apportées à partir des indications exposées au chapitre I. Nous insistons plus particulièrement sur les réalisations techniques que nous avons été amenés à mettre au point, soit parce que la solution de certains problèmes technologiques n'existait pas "commercialement", soit parce que les contraintes imposées par les conditions expérimentales (étuvage, propreté, vide limite) nécessitaient la transformation des appareils disponibles. Finalement, nous indiquons les performances de nos dispositifs, les causes d'erreurs et les remèdes que nous avons employés pour améliorer la précision de nos mesures.

Le chapitre III est consacré aux résultats expérimentaux et aux interprétations qu'ils suggèrent. Nous montrons l'influence des

défauts superficiels signalés ci-dessus en nous intéressant plus particulièrement à la région du plasmon de surface en liaison avec la rugosité de l'échantillon et la nature de certaines couches protectrices semi-transparentes.

Chapitre I

I.1 - METHODES UTILISEES POUR LA DETERMINATION DES CONSTANTES OPTIQUES.

I.1.1 - Généralités. Notations.

Dans le domaine spectral étudié ($500\ \mathring{A} < \lambda < 2500\ \mathring{A}$), tous les milieux examinés sont représentés optiquement par un indice de réfraction $\hat{N}$ complexe.

$$\hat{N} = n - ik \qquad \text{I.1}$$

n étant l'indice de réfraction,
k étant l'indice d'extinction.

(Seule l'atmosphère résiduelle dans laquelle sont conservés et examinés les échantillons est affectée d'un indice réel $n_1 = 1$).

Afin d'appliquer les relations générales qui décrivent le comportement d'une onde électromagnétique dans les milieux qu'elle traverse, nous considérons ceux-ci comme étant homogènes, isotropes et séparés par des surfaces planes et parallèles entre elles (figure 1).

L'onde élémentaire utilisée pour établir les lois de la propagation est une onde plane homogène, monochromatique, polarisée rectilignement, son déplacement dans la direction Oz dans un milieu infini d'indice $\hat{N}$ est représenté par les variations de son vecteur champ électrique E_x.

$$E_x = E_o\, e^{i\omega(t - \hat{N}\frac{Z}{c})} \qquad \text{I.2}$$

ou, en explicitant à l'aide de I.1 :

$$E_x = E_o\, e^{-k(\omega\frac{Z}{c})}\, e^{i\omega(t - n\frac{Z}{c})} \qquad \text{I.3}$$

I.3 montre que l'indice d'extinction k est associé à la diminution de l'amplitude du vecteur champ électrique dans le milieu $\hat{N}$, et

---

^ *Quantité exprimée par un nombre complexe.*

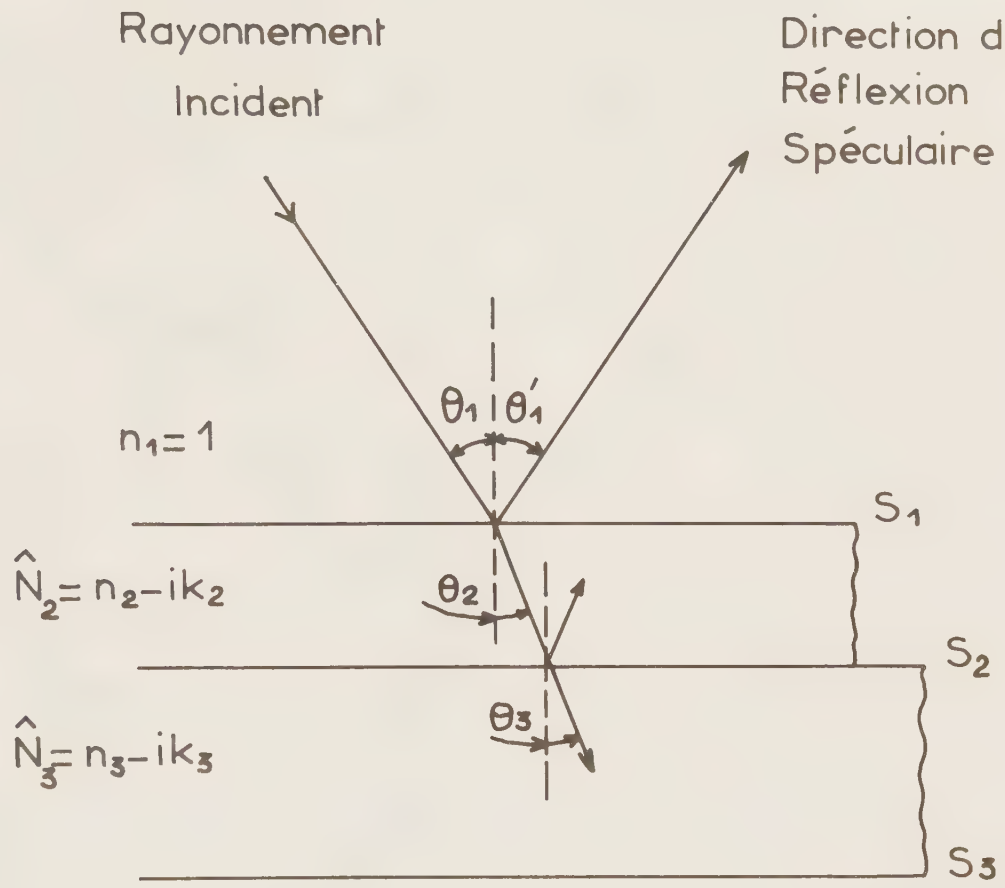

Rayonnement
Incident
Direction de
Réflexion
Spéculaire
θ_1 θ'_1
$n_1 = 1$
S_1
$\hat{N}_2 = n_2 - ik_2$
θ_2
S_2
θ_3
$\hat{N}_3 = n_3 - ik_3$
S_3

FIG : 1

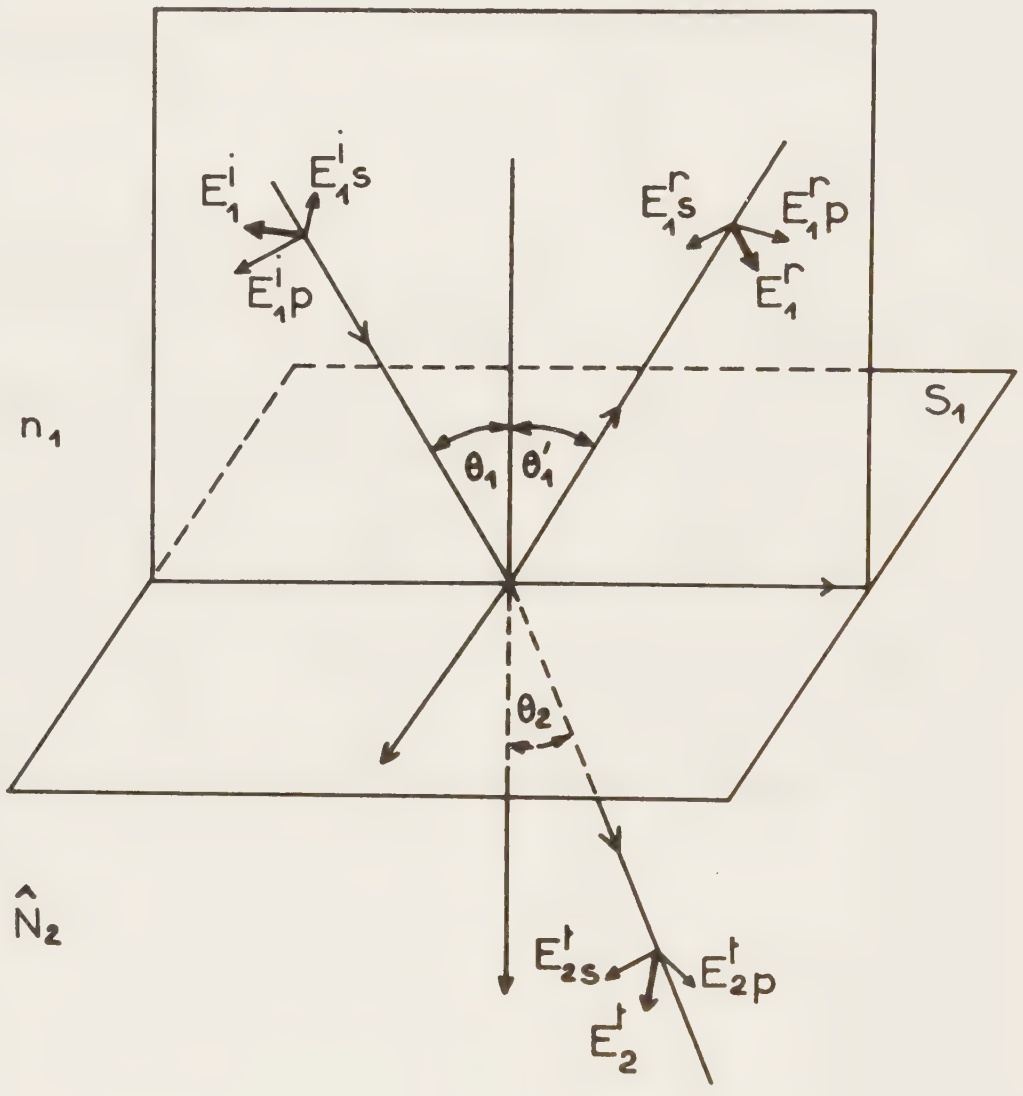

E_1^i
E_{1s}^i
E_{1p}^i
E_{1s}^r
E_{1p}^r
E_1^r
n_1
S_1
θ_1
θ_1'
θ_2
$\hat{N}_2$
E_{2s}^t
E_{2p}^t
E_2^t

FIG: 2

que l'indice de réfraction est lié à la vitesse de propagation de l'onde dans ce milieu $v = \frac{c}{n}$. *(Annexe IV)*

Lorsqu'une onde plane homogène rencontre un second milieu, nous savons, |1| |2| |3|, que les ondes transmise et réfléchie qui prennent naissance à la surface de séparation doivent vérifier les relations de Fresnel. Si l'on prend l'amplitude de l'onde incidente pour unité, ces relations s'écrivent pour des milieux transparents sous la forme I.4.

$$\rho_p = \frac{n_2 \cos\theta_1 - n_1 \cos\theta_2}{n_2 \cos\theta_1 + n_1 \cos\theta_2}$$

$$\rho_s = \frac{n_1 \cos\theta_1 - n_2 \cos\theta_2}{n_1 \cos\theta_1 + n_2 \cos\theta_2}$$

coefficients de réflexion

$$t_s = \frac{2\, n_1 \cos\theta_1}{n_2 \cos\theta_1 + n_1 \cos\theta_2}$$

$$t_p = \frac{2\, n_1 \cos\theta_1}{n_1 \cos\theta_1 + n_2 \cos\theta_2}$$

coefficients de transmission

I.4

θ_1 étant l'angle d'incidence sur S_1 et θ_2 l'angle de réfraction (figure 2).

ρ_p étant le rapport entre les composantes parallèles des champs électriques réfléchi et incident = E^r_{1p}/E^i_{1p}

ρ_s étant le rapport entre les composantes perpendiculaires des champs réfléchi et incident = E^r_{1s}/E^i_{1s}

t_s et t_p étant les rapports analogues entre les champs transmis et incident : E^t_{2s}/E^i_{1s} et E^t_{2p}/E^i_{1p}.

Les détecteurs utilisés étant sensibles à l'énergie transportée par l'onde fournissent une réponse proportionnelle à l'intensité du rayonnement. Si E est l'amplitude du champ, l'intensité du rayonnement s'écrit sous la forme :

$$I = |E|^2 \qquad \text{I.5}$$

ou, si E est exprimé sous forme complexe

$$I = |\hat{E} \cdot \hat{E}^*| \qquad I.5$$

Le rayonnement destiné aux mesures étant un faisceau de lumière naturelle, nous le représentons par une distribution isotrope d'ondes planes homogènes monochromatiques polarisées rectilignement. En écrivant que le vecteur champ électrique représentatif de chaque onde est la somme des deux composantes E_s et E_p (figure 2), nous aurons pour expression de l'intensité du rayonnement |3| :

$$I = \frac{1}{2}(I_s + I_p) = \frac{1}{2}(E_s E_s^* + E_p E_p^*) \qquad I.6$$

Le comportement de la lumière dans ces milieux nous permet :

1°) de déterminer la méthode de mesure.

2°) de justifier certaines simplifications dans le développement des calculs.

- Les couches minces des matériaux étant déposées sur des supports en pyrex poli opaques au rayonnement de $\lambda < 3200$ Å, et les méthodes polarimétriques étant (pour l'instant) en pratique inutilisables dans le domaine de longueurs d'onde inférieures à 1100 Å (en raison du faible taux de lumière réfléchie par les polariseurs en réflexion, de la mauvaise connaissance de leurs propriétés dans ce domaine et de l'évolution (par pollution superficielle par exemple) de leurs qualités durant les expériences), nous avons utilisé exclusivement la valeur du facteur de réflexion ou pouvoir réflecteur R présenté par les échantillons pour déterminer leurs propriétés optiques. Cette grandeur R peut être mesurée pour chaque longueur d'onde en fonction de l'angle d'incidence θ_1 du faisceau sur les couches minces et de l'épaisseur e_1 de celles-ci. Elle est mesurée par le rapport entre l'intensité de l'onde dans la direction θ_1, I_θ, et l'intensité initiale I_o,

---

* *indique que l'on prend la valeur conjuguée.*

soit : $$R(\lambda,\theta) = \frac{I_\theta}{I_o} \qquad I.7$$

- Nous séparerons notre domaine spectral en 2 zones :

La première, correspondant aux longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde critique λ_c.

La seconde, correspondant aux longueurs d'onde inférieures à λ_c ; le rayonnement étant peu absorbé ($k << 1$), l'onde réfléchie par la surface S_2 après traversée de la couche mince donne avec l'onde réfléchie sur S_1 un système d'interférences dans la direction de réflexion spéculaire, (figure 1).

On rappelle |3| *que, si le milieu est un diélectrique non absorbant, les amplitudes des champs* s *et* p *réfléchis obéissent aux relations :*

$$\left.\begin{aligned} \rho_s . e^{i\delta_s} &= \frac{\rho_{1s} + \rho_{2s}\, e^{-i\phi}}{1 + \rho_{1s}.\rho_{2s} e^{-i\phi}} \\ \rho_p . e^{i\delta_p} &= \frac{\rho_{1p} + \rho_{2p}\, e^{-i\phi}}{1 + \rho_{1p}.\rho_{2p} e^{-i\phi}} \end{aligned}\right\} \quad I.8$$

δ_s *et* δ_p *représentant les déphasages respectifs des composantes réfléchies* s *et* p, *par rapport aux composantes incidentes du même nom, et les indices* 1 *et* 2 *étant relatifs au milieu dans lequel l'onde se propage (figure 2).*

I.1.2 - Zone de forte réflexion. (Métaux).

Elle correspond pour les métaux étudiés (métaux suivant assez bien la théorie de l'électron libre) au domaine de longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde critique λ_c *(Annexe IV)*. Pour les valeurs inférieures à cette longueur d'onde, le métal est comparable, au point de vue optique, à un diélectrique |4| (nous sommes alors dans la zone de faible absorption). Ainsi, pour les $\lambda > \lambda_c$, seule la lumière réfléchie par la surface S_1 (figure 2) est prise en compte. Le

pouvoir réflecteur ne dépend plus de l'épaisseur (à partir du moment où la couche est toutefois suffisamment homogène et épaisse) et il peut être évalué pour chaque longueur d'onde suivant la relation générale :

$$R(\lambda) = f(\theta_1, n_1, n_2, k_2) \qquad \text{I.9}$$

En remplaçant dans les relations de Fresnel (I.4) l'indice réel n_2 par la valeur complexe $\hat{N}_2$ et l'angle θ_2 par $\hat{\theta}_2$, la loi de Snell $n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2$ s'écrit |3| :

$$n_1 \sin \theta_1 = \hat{N}_2 \sin \hat{\theta}_2 \qquad \text{I.10}$$

et les relations de Fresnel, pour l'onde réfléchie seulement, se mettent sous la forme :

$$\left.\begin{aligned} \rho_p e^{i\phi_p} &= \frac{\hat{N}_2 \cos \theta_1 - n_1 \cos \hat{\theta}_2}{\hat{N}_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \hat{\theta}_2} \\ \rho_s e^{i\phi_s} &= \frac{n_1 \cos \theta_1 - \hat{N}_2 \cos \hat{\theta}_2}{n_1 \cos \theta_1 + \hat{N}_2 \cos \hat{\theta}_2} \end{aligned}\right\} \text{I.11}$$

Le pouvoir réflecteur pour une lumière naturelle s'écrivant :

$$R = \frac{1}{2}\left(\rho_p \rho_p^* + \rho_s \rho_s^*\right) = \frac{1}{2}\left(\rho_p^2 + \rho_s^2\right) \qquad \text{I.12}$$

nous poserons |5|

$$\left.\begin{aligned} \hat{N}_2 \cos \hat{\theta}_2 = p_1 - iq_1 &= \sqrt{(n_2 - ik_2)^2 - n_1^2 \sin^2 \theta_1}\ ; \\ |\cos^2 \theta_2| &= \frac{p_1^2 + q_1^2}{n_2^2 + k_2^2} \end{aligned}\right\} \text{I.13}$$

$$\left.\begin{aligned} A_1 &= n_2^2 - k_2^2 - n_1^2 \sin^2 \theta_1 = p_1^2 - q_1^2 \\ B_1 &= n_2 k_2 \qquad\qquad\qquad\quad = p_1 q_1 \end{aligned}\right\} \text{I.14}$$

d'où

$$\left.\begin{aligned} 2p_1^2 &= A_1 + \left|(A_1^2 + 4B_1^2\right|^{1/2} \\ 2q_1^2 &= -A_1 + (A_1^2 + 4B_1^2)^{1/2} \end{aligned}\right\} \quad \text{I.15}$$

Nous obtenons les équations I.16 permettant de calculer le facteur de réflexion d'une couche mince d'indice $\hat{N}_2$ pour l'incidence θ_1 :

$$\rho_p^2 = \frac{\left|(n_2^2 - k_2^2)\cos\theta_1 - p_2\right|^2 + \left|2n_2k_2\cos\theta_1 - q_1\right|^2}{\left|(n_2^2 - k_2^2)\cos\theta_1 + p_1\right|^2 + \left|2n_2k_2\cos\theta_1 + q_1\right|^2} \qquad \text{I.16}$$

$$\rho_s^2 = \frac{(n_1\cos\theta_1 - p_1)^2 + q_1^2}{(n_1\cos\theta_1 + p_1)^2 + q_1^2} \qquad \text{I.17}$$

et s'écrivant pour l'incidence normale $\theta_1 = 0$:

$$\rho_s^2 = \rho_p^2 = \frac{(n_2 - n_1)^2 + k_2^2}{(n_2 + n_1)^2 + k_2^2} = R_N \qquad \text{I.18}$$

ou

$$\rho_N e^{i\phi} = \frac{n_2 - ik_2 - n_1}{n_2 - ik_2 + n_1} \qquad \text{I.19}$$

ϕ étant le déphasage existant entre l'onde réfléchie normalement et l'onde incidente.

A partir des équations précédentes (I.16, I.17, I.18), nous avons utilisé deux méthodes de calcul destinées à calculer les valeurs n_2 et k_2 à partir du facteur de réflexion :

la première utilise les valeurs de R pour deux ou plusieurs angles d'incidence,

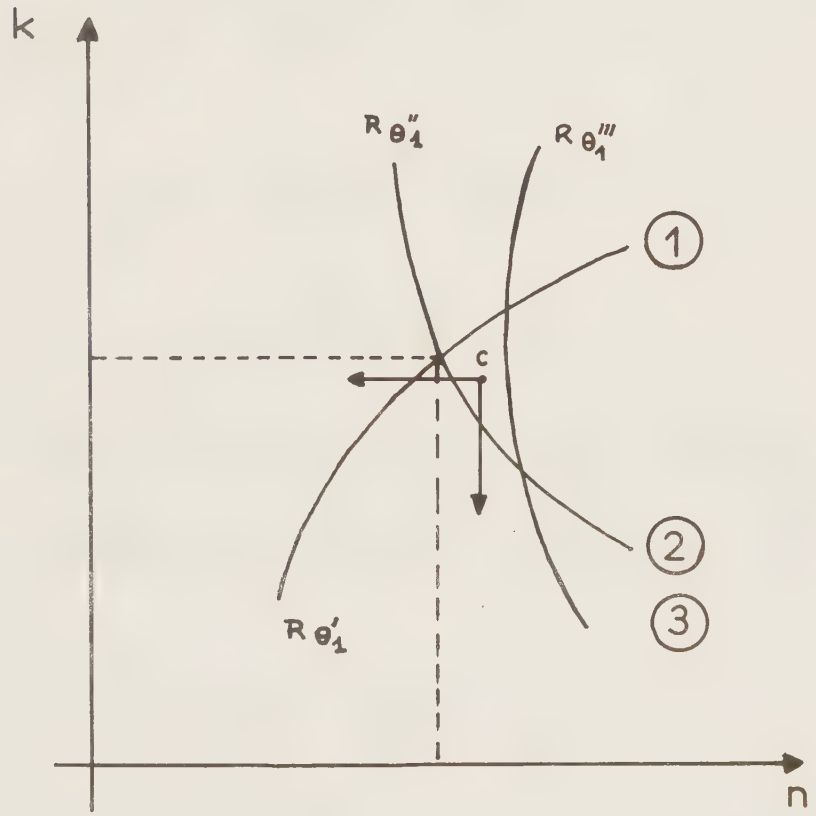
la seconde est basée sur l'application des relations de dispersion de Kramers-Kronig relatives à l'incidence normale.

I.1.2.1 - Méthode à plusieurs angles d'incidences.

Si nous pouvons à partir des relations du paragraphe précédent calculer $R(\theta_1)$ connaissant θ_1, n_2, k_2, n_1, le processus inverse consistant à évaluer n_2 et k_2 connaissant $R(\theta_1)$ pour deux valeurs de θ_1 n'a malheureusement pas de solution algébrique. La méthode pratique utilisée consiste à tracer dans un repère d'axes n,k des courbes d'isoréflectance pour des angles d'incidence différents θ_1', θ_1'', etc ... Ces courbes sont établies de façon systématique en donnant à n_2 et k_2 des valeurs croissant régulièrement dans un domaine de variation compris entre 0 et 4 par exemple (choisi parce qu'il doit correspondre à l'ensemble du domaine des variations des constantes optiques des corps examinés). Après avoir relevé les valeurs $R(\theta_1')$ et $R(\theta_1'')$ relatives à la couche étudiée, il suffit de reporter les deux courbes correspondant aux valeurs mesurées dans un même repère n,k ; les valeurs cherchées de n_2 et k_2 sont les abscisse et ordonnée du point d'intersection des deux courbes (1) et (2) |6| (figure 3). On peut également procéder à une troisième mesure (3) correspondant à une autre incidence θ_1''' pour améliorer la précision, les coordonnées du centre de gravité C (figure 3) du triangle d'incertitude étant prises comme valeurs moyennes des constantes optiques n_2 et k_2. *ISHIGURO* |7| a utilisé les courbes d'isoréflectance et dressé des tables de valeurs du pouvoir réflecteur (pour une lumière naturelle), à partir des relations I.16 et I.17 pour différentes valeurs de n et k comprises dans l'intervalle 0 à 4 et variant par pas de un dixième.

Pour obtenir une plus grande précision, nous avons établi à l'aide d'un ordinateur, une série de tables, analogues à celle d'*ISHIGURO* dont le pas de variation est de 1/100 pour n et pour k, ces deux grandeurs variant entre 0 et 4.

Les angles d'observation choisis sont 20, 30, 45 et 60 degrés. La précision que l'on peut attendre de cette méthode a été examinée en détail par *WARD* |8| et *HUNTER* |9|. Parmi tous les paramètres agissants (erreur de mesure du pouvoir réflecteur, erreur sur l'angle d'incidence, erreur sur l'état de polarisation de la lumière, etc...), nous avons constaté que l'erreur sur la mesure absolue du pouvoir réflecteur (évaluée à ± 0,5 %) était celle qui provoquait l'incertitude



R_θ - Courbe d'isoreflectance

(1) $\theta'_1 = 20°$

(2) $\theta''_1 = 45°$

(3) $\theta'''_1 = 60°$

Fig. 3

la plus grande sur n et k. Les erreurs sur n et k que nous indiquerons sont donc celles liées à l'incertitude sur les mesures des pouvoirs réflecteurs.

I.1.2.2 - Méthode de Kramers-Krönig.

Cette méthode est basée sur l'évaluation du déphasage (ϕ) provoqué à la réflexion de la surface à partir des seules valeurs du pouvoir réflecteur pour l'incidence normale R_N. Nous pouvons à partir de I.18 et I.19 exprimer simplement les constantes optiques n et k par

$$\left.\begin{aligned} n &= \frac{1 - R_N}{1 + R_N - 2 \cos\phi \sqrt{R_N}} \\ k &= \frac{-2 \sin\phi \sqrt{R_N}}{1 + R_N - 2 \cos\phi \sqrt{R_N}} \end{aligned}\right\} \quad \text{I.20}$$

On mesure le pouvoir réflecteur pour chaque longueur d'onde λ_o correspondant à une fréquence ω_o.

Les valeurs de l'angle ϕ sont évaluées en fonction de ω à partir de la relation :

$$\theta(\omega_o) = \frac{1}{\pi} \int_o^\infty L \frac{\omega + \omega_o}{\omega - \omega_o} d \frac{(L \sqrt{R_\omega})}{d\omega} d\omega \qquad \text{I.21}$$

relation établie par *BODE* |10| à partir des relations de dispersion de *KRAMERS-KRONIG* |11| ; les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique ou de l'indice de réfraction sont reliées par des relations identiques |12|.

La relation I.19 nécessite la connaissance du pouvoir réflecteur des échantillons dans le plus grand domaine de longueurs d'onde, en principe de 0 à l'infini. En fait, notre domaine spectral étant compris entre 500 et 2500 Å, nous devrons procéder à une extrapolation des résultats en dehors de notre domaine de mesure, ce qui conduit à poser

$$\theta_{(\omega o)} = \int_{o}^{\omega_1} + \int_{\omega_1}^{\omega_2} + \int_{\omega_2}^{\infty}$$

ω_1 et ω_2 étant les valeurs limites correspondant à notre domaine de mesures.

Du côté des longueurs d'onde supérieures à 2500 $\mathring{A}$:

a) Visible et infra-rouge : En général, il existe des valeurs expérimentales obtenues par d'autres auteurs dans ce domaine ;

b) Dans le domaine des très grandes longueurs d'onde, les corps étudiés suivant la théorie de Drude, nous avons utilisé des valeurs théoriques calculées.

Du côté des longueurs d'onde inférieures à 500 $\mathring{A}$, l'extrapolation est effectuée en donnant à R une variation décroissante (logarithmique) en fonction de la fréquence.

La constante d'intégration obtenue est déterminée par un procédé d'ajustage qui permet d'établir la valeur correcte du déphasage. On compare par approches successives les grandeurs n et k obtenues à l'aide de cette méthode pour deux valeurs précises ω_3 et ω_4 du domaine de mesures, aux valeurs des constantes optiques données par une autre méthode (méthode de Tousey par exemple) pour ces mêmes valeurs de ω_3 et ω_4.

Pour une plus grande précision, on choisit ω_3 et ω_4 dans la région où la méthode prise en référence est la plus précise. Le programme de calcul pour IBM 1620 est donné annexe I.

Pour une application rigoureuse de cette méthode, la valeur de R devrait être obtenue pour l'incidence normale $\theta_1 = 0$. Notre dispositif expérimental ne permettant pas d'effectuer de mesure pour des angles d'incidence inférieurs à 13 °, on doit s'attendre, comme l'ont montré ROESSLER |13| et NILSON |14| à trouver quelques différences entre les résultats des mesures optiques et ceux fournis par d'autres méthodes (perte caractéristique d'énergie d'électron par exemple). Par ailleurs, la fonction choisie pour représenter les valeurs de $R(\omega)$ *à l'extérieur du domaine de mesures, influence également la précision des résultats et son choix peut être délicat. En ce qui concerne l'aluminium et le magnésium, ce choix est moins critique. En effet, la méthode est surtout*

sensible aux changements de pente de $R(\omega)$ *comme l'indique* $d\frac{(L\sqrt{R_\omega})}{d\omega}$ *dans (I.21) ; comme à l'extérieur du domaine spectral exploré* $R(\lambda)$ *tend rapidement vers 0 pour les longueurs d'ondes inférieures à 500 Å et vers 1 pour les longueurs d'ondes supérieures à 2500 Å, on peut négliger l'influence des accidents de* $R(\omega)$ *à l'extérieur du domaine 500 - 3000 Å.*

I.1.3 - Zone de semi-transparence ($\lambda < \lambda_c$).

Suivant la nature du matériau étudié, nous avons employé deux méthodes de calcul différentes pour la détermination des valeurs n et k. La plus générale, applicable à tous les cas étudiés, est basée sur le développement des relations de Fresnel dans le cas de réflexions multiples. La seconde, utilisable pour les matériaux d'indice relatif $n_2/n_1 < 1$ tient compte du phénomène de réflexion totale et de la mesure de l'angle critique θ_c.

I.1.3.1 - Méthode basée sur la composition des indices n_1, $\hat{N}_2$ *et* $\hat{N}_3$ *pour des valeurs* θ_1', θ_1'', θ_1''' *de l'angle d'incidence (figure 1).*

Elle consiste comme la méthode de Tousey à comparer les valeurs expérimentales du pouvoir réflecteur mesurées suivant les angles d'incidences différents (θ_1', θ_1'', θ_1''') aux valeurs théoriques obtenues à l'aide des relations I.25, I.26, I.27 que nous allons établir.

Le support d'indice $\hat{N}_3$ étant, dans tous les cas étudiés ici, complètement opaque au rayonnement, nous n'aurons pas à faire intervenir dans les relations utilisées l'épaisseur du support ni les réflexions sur la face S_3 (figure 1). Le comportement de l'onde incidente dépend ainsi de la longueur d'onde λ, des indices n_1, $\hat{N}_2$, $\hat{N}_3$ des trois milieux concernés, de l'épaisseur e de la substance à mesurer et de l'angle d'incidence θ_1 sur S_1.

Nous généralisons la méthode déjà employée au paragraphe précédent en écrivant avec [5] la loi de Snell pour les milieux I, II et III.

$$n_1 \sin \theta_1 = \hat{N}_2 \sin \hat{\theta}_2 = \hat{N}_3 \sin \hat{\theta}_3$$

Nous étendons la notation complexe aux relations décrivant une situation analogue dans le cas des diélectriques transparents comme l'ont fait |5| |15| et |16|, aux relations I.8 écrites sous forme complexe,

$$r_p = \rho_p e^{i\phi_p} = \frac{r_{1p} + r_{2p}\, e^{-i\alpha}}{1 + r_{1p}\, r_{2p}\, e^{-i\alpha}}$$

$$r_s = \rho_s e^{i\phi_s} = \frac{r_{1s} + r_{2s}\, e^{-i\alpha}}{1 + r_{1s}\, r_{2s}\, e^{-i\alpha}}$$

ϕ_p et ϕ_s sont les déphasages correspondant entre les amplitudes incidente et réfléchie respectivement $\perp$ et $//$ au plan d'incidence ;

r_{1p}, r_{1s} sont les valeurs des coefficients de réflexion p et s de l'onde réfléchie par S_1

r_{2p}, r_{2s} sont les valeurs des coefficients de réflexion p et s de l'onde réfléchie par S_2

α étant l'angle de déphasage entre l'onde réfléchie par S_2 et l'onde réfléchie par S_1 :

$$\alpha = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot 2\hat{N}_2\, e \cos \hat{\theta}_2 \qquad \text{I.22}$$

nous devons ajouter, correspondant aux relations I.11, I.13, I.14, I.15, I.16 et I.17, les formules suivantes afin de tenir compte du cheminement de l'onde dans le milieu d'indice $\hat{N}_2$ (comme $n_1 = 1$) :

$$\left.\begin{aligned} \hat{N}_3 \cos \hat{\theta}_3 = p_2 - iq_2 &= \sqrt{(n_3 - ik_3)^2 - \sin^2 \theta_1} \\ \text{avec} \qquad (\cos^2 \theta_3) &= \frac{p_2^2 + q_2^2}{n_3^2 + k_3^2} \\ A_2 = n_3^2 - k_3^2 - \sin^2 \theta_1 &= p_2^2 - q_2^2 \\ B_2 = n_3\, k_3 &= p_2 \cdot q_2 \end{aligned}\right\} \qquad \text{I.23}$$

$$2\,q_2^2 = -\,(n_3^2 - k_3^2 - \sin^2\theta_1) \pm \left|(n_3^2 - k_3^2 - \sin^2\theta_1)^2 + 4\,n_3^2\,k_3^2\right|^{1/2}$$

$$2\,p_2^2 = +\,(n_3^2 - k_3^2 - \sin^2\theta_1) \pm \left|(n_3^2 - k_3^2 - \sin^2\theta_1)^2 + 4\,n_3^2\,k_3^2\right|^{1/2} \qquad \text{I.24}$$

on obtient :

$$R_s = \frac{\rho_{1s}^2 + \rho_{2s}^2 \cdot e^{-2\gamma} + 2\,\rho_{1s}\,\rho_{2s}\,e^{-\gamma} \cdot \cos(\phi_{1s} - \phi_{2s} + \beta)}{1 + \rho_{1s}^2 \cdot \rho_{2s}^2 \cdot e^{-2\gamma} + 2\,\rho_{1s}\,\rho_{2s}\,e^{-\gamma} \cdot \cos(\phi_{1s} + \phi_{2s} - \beta)}$$

$$R_p = \frac{\rho_{1p}^2 + \rho_{2p}^2 \cdot e^{-2\gamma} + 2\,\rho_{1p}\,\rho_{2p}\,e^{-\gamma} \cdot \cos(\phi_{1p} - \phi_{2p} + \beta)}{1 + \rho_{1p}^2 \cdot \rho_{2p}^2 \cdot e^{-2\gamma} + 2\,\rho_{1p}\,\rho_{2p}\,e^{-\gamma} \cdot \cos(\phi_{1p} + \phi_{2p} - \beta)} \qquad \text{I.25}$$

Les grandeurs ρ_{1s} , ρ_{1p} , ϕ_{1s} , ϕ_{2p} étant définies dans les relations I.11, les grandeurs ρ_{2s} ; ρ_{2p} ; ϕ_{2s} ; ϕ_{2p} étant les grandeurs analogues en remplaçant dans I.11 les indices 1 et 2 respectivement par 2 et 3, β et γ représentent les parties réelle et imaginaire du déphasage α existant entre l'onde incidente et l'onde réfléchie.

$$\alpha = \beta - i\gamma = \frac{4\pi}{\lambda}\,(n_2 - ik_2)\,e\cos\theta_2 \qquad \text{I.26}$$

$$\beta = \frac{4\pi}{\lambda}\,e\,n_2\cos\theta_2$$

$$\gamma = \frac{4\pi}{\lambda}\,e\,k_2\cos\theta_2$$

Les valeurs des angles ϕ_{1s}, ϕ_{1p}, ϕ_{2s}, ϕ_{2p} sont définies par leur tangente obtenue en faisant, pour chaque composante, le rapport de la partie imaginaire à la partie réelle, soit :

$$\operatorname{tg}\phi_{1s} = \frac{2\,q_1\cos\theta_1}{\cos^2\theta_1 - (p_1^2 + q_1^2)}$$

$$\operatorname{tg}\phi_{1p} = \frac{2\left|q_1(n_2^2 - k_2^2) - 2\,p_1\,n_2\,k_2\right|\cos\theta_1}{\left|(n_2^2 + k_2^2)^2\cos^2\theta_1 - (p_1^2 + q_1^2)\right|} \qquad \text{I.27}$$

$$\left.\begin{aligned} \operatorname{tg} \phi_{2s} &= \frac{2\,[q_2\,p_1 - q_1\,p_2]}{(p_1^2 - p_2^2) + (q_1^2 - q_2^2)} \\ \operatorname{tg} \phi_{2p} &= \frac{2\,[(n_2q_2 + k_2p_2)\,(n_3^2 - k_3^2) - 2\,n_3k_3\,(n_2p_2 - k_2q_2)]\,\cos\hat{\theta}_2}{|n_3^2 + k_3^2|^2\cos^2\theta_2 - (p_2^2 + q_2^2)\,(n_2^2 + k_2^2)} \end{aligned}\right\} \text{I.28}$$

Dans notre cas, la lumière incidente n'étant pas polarisée nous utiliserons pour évaluer le pouvoir réflecteur R la relation I.13 :

$$R = \frac{1}{2}\,(R_s + R_p)$$

L'ordinateur IBM 1620, utilisé précédemment, ayant une capacité insuffisante pour traiter les relations I.25, I.26, I.27 rapidement, nous avons dû utiliser l'ordinateur du C.N.E.S. et, plus récemment, l'ordinateur C II 10070 de la Faculté des Sciences de Rennes.

Ces tables numériques dressées à l'aide de ces ordinateurs indiquent pour chaque longueur d'onde d'étude les valeurs théoriques du pouvoir réflecteur, pour trois angles d'incidence (20°, 45°, 60°), de couches semi-transparentes de différentes épaisseurs e_1 pour des constantes optiques variant par 1/100 dans un intervalle suffisamment large pour contenir les valeurs exactes de ces grandeurs. Des résultats antérieurs [17] nous ont permis de donner à n_2 et k_2 des valeurs approximatives. Ces grandeurs sont ensuite déterminées par approches successives en comparant les valeurs expérimentales obtenues pour R_{20}, R_{45}, R_{60} et les valeurs calculées. Nous indiquons dans le chapitre III un exemple d'utilisation de ces tables par l'intermédiaire d'abaques. Le programme de calcul est donné dans l'appendice II. L'application de ce procédé est long et fastidieux, aussi avons-nous employé, lorsque l'indice n_2 était inférieur à n_1, une méthode plus souple et plus précise, que nous décrivons brièvement ci-dessous.

I.1.3.2 - Méthode de l'angle critique.

Si l'on considère une substance transparente d'indice de réfraction n_2 inférieur à l'indice n_1 du milieu dans lequel se propage l'onde incidente et l'onde réfléchie, la loi classique de la réfraction montre que pour des valeurs θ_1 de l'angle d'incidence supérieures à une certaine valeur limite θ_c donnée par

$$\theta_c = \text{arc sin} \frac{\theta_2}{\theta_1} \qquad \text{I.29}$$

il y a réflexion totale du rayonnement incident par la surface S_1. Il existe cependant dans le milieu d'indice n_2 une onde évanescente, son cheminement pouvant être schématisé par la figure 4 |18|. L'épaisseur du milieu d'indice n_2 intéressé étant très faible et d'autant plus petite que l'angle d'incidence θ_1 est plus grand. Si l'on trace la courbe du pouvoir réflecteur en fonction de l'angle d'incidence θ_1, pour λ donnée il apparaît une brusque discontinuité pour la valeur θ_c (figure 5a). Le pointé de l'angle θ_c pouvant être très précis, cette méthode permet d'évaluer n_2 avec une erreur sur la 4ème décimale |19| seulement.

Dans le cas où la substance est absorbante, cette discontinuité disparaît et l'allure de la courbe $R = f(\theta_1)$ est plus amortie comme l'indique la figure 5b. *HUNTER* |20| |21| a montré que, malgré tout, l'angle θ_M pour lequel la pente de cette courbe est maximum peut être considéré comme étant égal à θ_c si k_2 est suffisamment petit. Les relations de Fresnel (I.11) nous donnent d'ailleurs la possibilité de tracer les valeurs calculées du pouvoir réflecteur pour n_2 donné et pour k_2 variant dans certaines limites (figure 5b) en fonction de θ_1

Nous avons utilisé cette méthode pour l'aluminium et le magnésium dans le domaine de longueurs d'onde inférieures à λ_c, k_2 ayant alors des valeurs inférieures à 0,1 ; la précision des mesures permet ainsi de connaître n_2 et k_2 avec deux ou trois décimales exactes.

n_2 est défini directement par la mesure de θ_M connue à un demi degré près.

k_2 est calculé par interpolation, comme le suggère la figu-

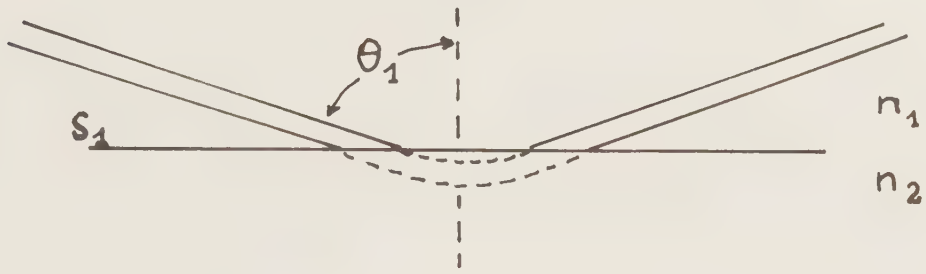

θ_1
S_1
n_1
n_2

Fig. 4

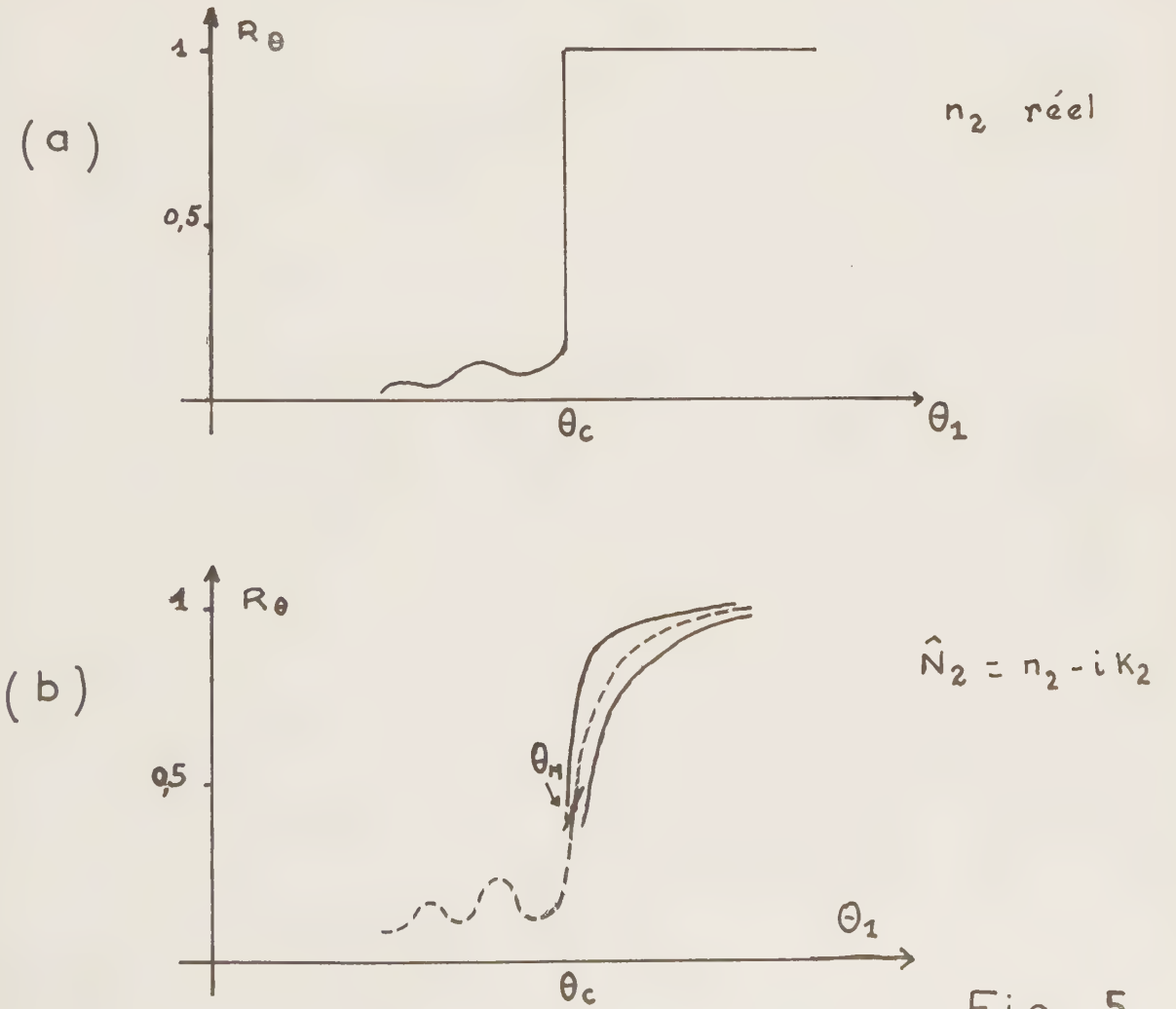

(a)
1
R_θ
0,5
n_2 réel
θ_c
θ_1
(b)
1
R_θ
0,5
θ_m
$\hat{N}_2 = n_2 - i K_2$
θ_1
θ_c

Fig. 5

re 5b sur laquelle les courbes en traits pleins représentent $R(\theta)$ pour $k_1 = \alpha$, $k_1 = \beta$ et la courbe en pointillés indique des valeurs expérimentales.

Des mesures complémentaires peuvent être effectuées pour les incidences inférieures à θ_c ; elles montrent un système d'interférences entre la lumière réfléchie par S_1 et la lumière réfléchie (après transmission) par S_2, le comportement de l'onde plane pouvant être analysé dans cette zone de façon analogue à celle développée dans le paragraphe précédent.

La position des maxima et minima de la courbe $R = f(\theta_1)_{o}^{\theta_c}$ (figure 5b) est donnée par la relation |22|

$$N\lambda = P\lambda + 2T\,(n_2^2 - \sin^2\theta_1)^{1/2} \qquad \text{I.30}$$

où N est l'ordre d'interférence du maximum observé pour l'angle θ_1
λ la longueur d'onde de la radiation incidente,
P la différence de phase causée par la réflexion et la transmission du rayonnement,
T l'épaisseur du film.

La détermination de l'ordre d'interférence est faite par approches successives en assignant des valeurs croissantes par valeurs égales à 1/2 d'un maximum au minimum suivant. La méthode des moindres carrés permet de définir l'ordre d'interférence correspondant à la valeur minimum de la différence :

$$(\sin^2\theta)_{1\,exp} - (\sin^2\theta)_{1\,th}$$

où $(\sin\theta_1)_{exp}$ est la valeur expérimentale donnée par la position du maximum utilisé,
et $(\sin\theta_1)_{th}$ est la valeur donnée par la ligne des moindres carrés à partir de la relation I.31 :

$$\sin^2\theta_1 = n_2^2 - \left(\frac{\lambda}{2T}\right)^2 (N - P)^2 \qquad \text{I.31}$$

Connaissant l'épaisseur T du film mince observé, nous pouvons évaluer n_2 à l'aide de ces relations. Cette méthode permet également, pour certains matériaux, d'évaluer l'épaisseur de la couche avec une précision supérieure à celles d'autres méthodes (par exemple, déplacement des franges d'interférences du microscope interférentiel, quartz oscillant). Elle peut également être très intéressante pour les corps difficilement observables à l'air (alcalins, alcalino-terreux).

L'emploi de cette méthode et les exemples d'utilisation ont été donnés par SUTHERLAND [22] (la grandeur P est, dans une première étape, prise égale à zéro jusqu'à ce que la bonne valeur de N soit établie puis déterminée pour chaque longueur d'onde à l'aide de (I.31)).

Nous avons également utilisé les données expérimentales relevées dans la zone $0 < \theta_1 < \theta_c$ pour évaluer n_2 et k_2 par la méthode de composition d'indices décrite précédemment afin de comparer les résultats obtenus par les deux méthodes.

Les applications des méthodes précédentes restent limitées. D'une part, la précision des mesures photométriques ne permet pas d'exploiter entièrement les possibilités théoriques de ces méthodes. D'autre part, il n'a pas été pris en considération certaines différences existant entre les échantillons analysés et les modèles théoriques ayant servi à l'élaboration de ces méthodes.

I.2 - INFLUENCES DES CONDITIONS EXPERIMENTALES.

I.2.1 - Influences dues à la nature des surfaces.

Il est bien connu que des surfaces fraîchement préparées, par clivage ou par évaporation sous vide par exemple, subissent même sous très faible pression une pollution superficielle due à l'action physico-chimique des constituants gazeux de l'atmosphère résiduelle ou à la migration de molécules organiques diffusées par les dispositifs de pompage. |L'action des molécules organiques peut être ici considérée comme totalement écartée par l'utilisation de moyens de pompage propres (pompes à titane ou pompes cryogéniques par exemple)|. Nous avons indiqué sur la figure 6 le temps de formation d'une couche monomoléculaire sur une surface parfaitement propre en fonction de la pression existant dans l'enceinte de mesure et du coefficient de collage (probabilité pour qu'une molécule donnée soit retenue sur une surface qu'elle vient de rencontrer). Le temps expérimental nécessaire pour examiner les propriétés optiques d'une couche mince dans tout le domaine spectral exploré ($500<\lambda<2500$ Å) étant, à l'aide de notre dispositif de mesures, de 2 à 4 heures, nous voyons qu'il est nécessaire de maintenir les échantillons sous une pression inférieure à 10^{-9} torr. MADDEN |23| a montré comment l'action oxydante de l'atmosphère résiduelle sur des couches évaporées d'aluminium provoquait une dégradation des qualités réflectrices des échantillons. Nous avons reporté figure 7 le résultat de ces mesures pour diverses longueurs d'onde suivant la durée de l'expérience (les couches étant observées sous vide puis après remise à l'air).

Il est clair que la mesure des propriétés optiques de matériaux ayant une activité chimique aussi grande ou plus élevée que celle de l'aluminium ne peut être entreprise (dans l'ultraviolet lointain) sans tenir compte de l'évolution de la nature de la surface pendant et après sa préparation. Si l'influence de cette couche de "passage", d'épaisseur et de propriétés optiques souvent inconnues, affecte très peu les mesures effectuées dans le visible et l'infrarouge, dans l'ultraviolet lointain, par contre, il est nécessaire d'en tenir compte. Dans certains cas, cette épaisseur est suffisamment importante pour que les observations traduisent uniquement les propriétés de cette couche superficielle.

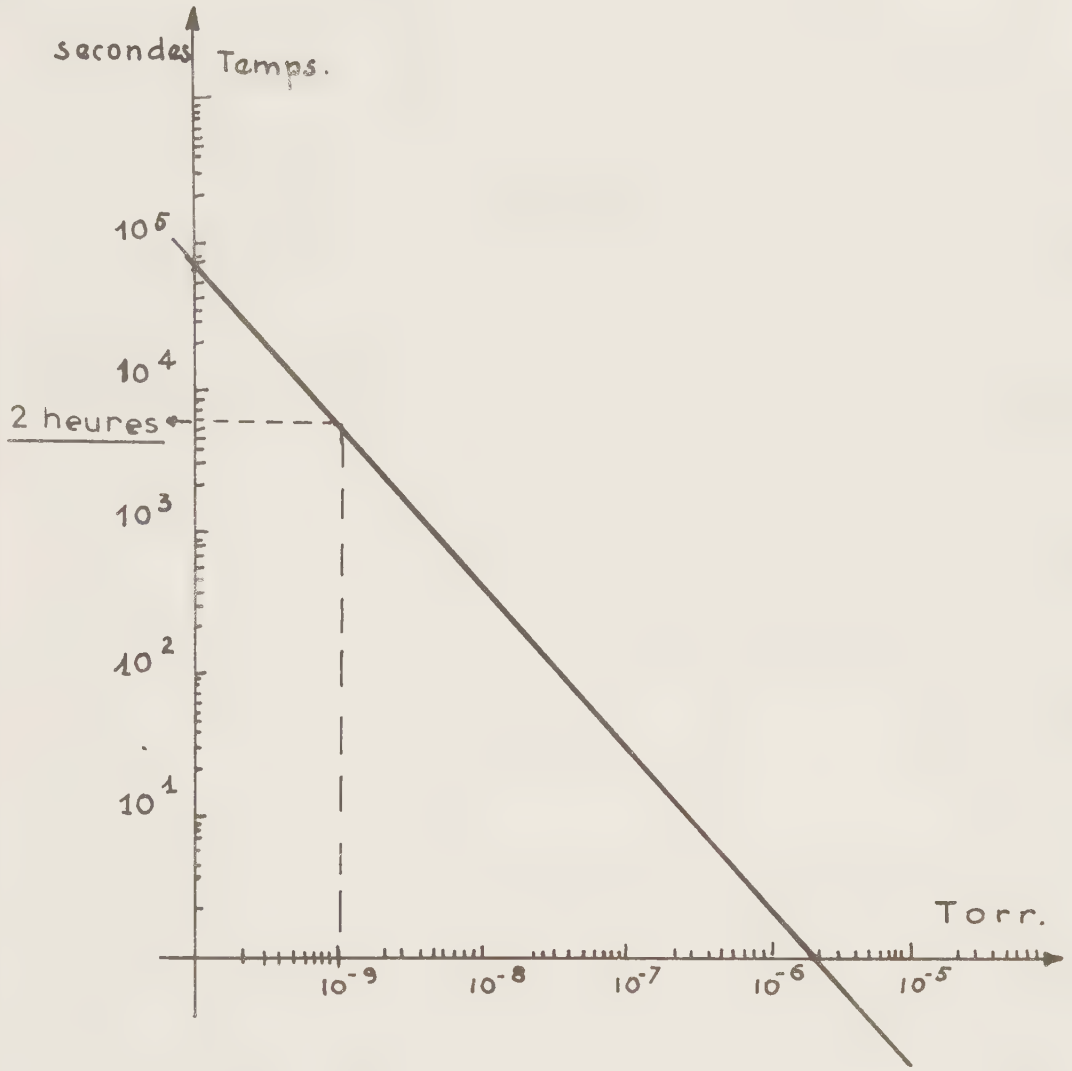

secondes
Temps.
10^5
10^4
2 heures
10^3
10^2
10^1
Torr.
10^{-9}
10^{-8}
10^{-7}
10^{-6}
10^{-5}

Fig. 6

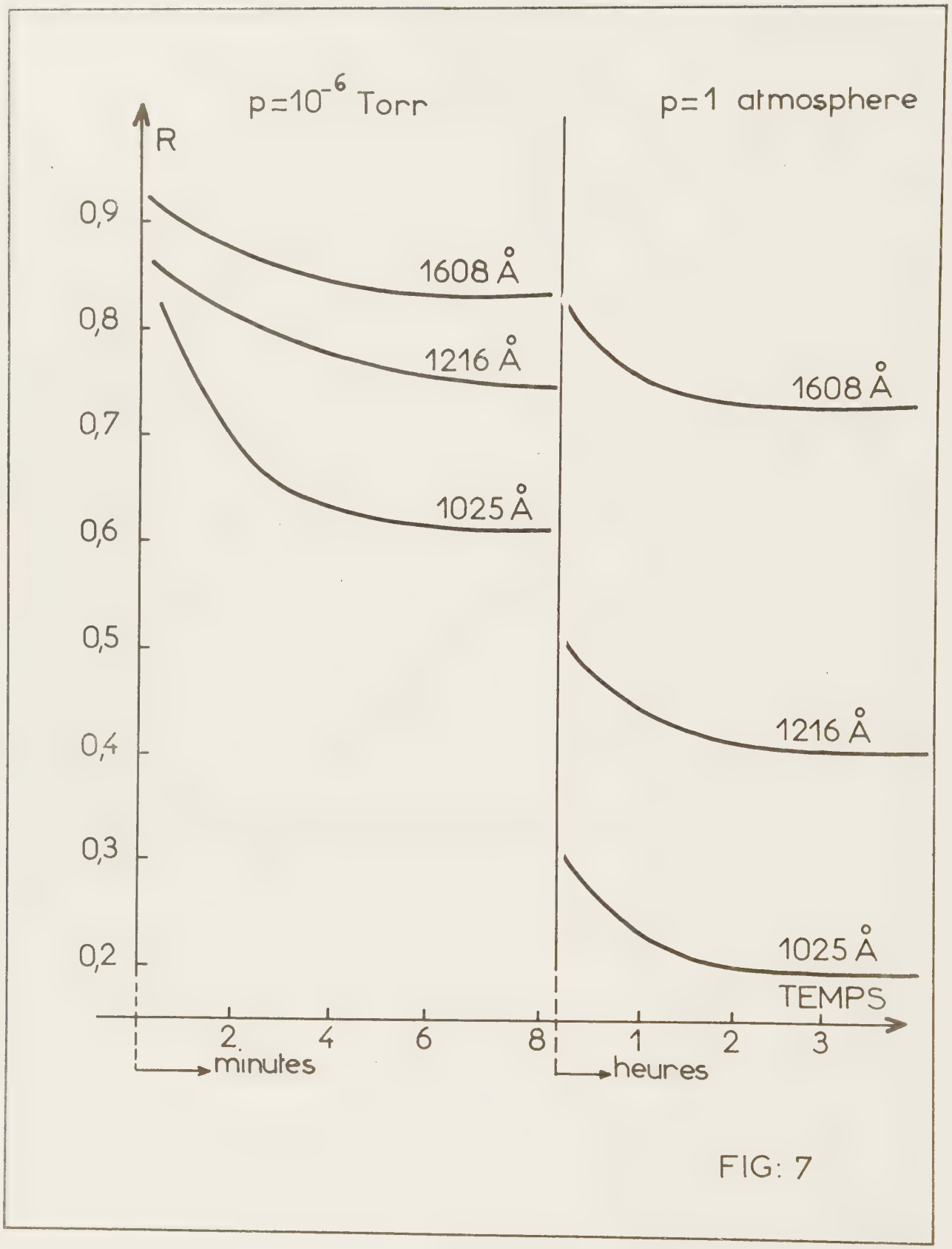

p=10⁻⁶ Torr
p=1 atmosphere
R
0,9
0,8
0,7
0,6
0,5
0,4
0,3
0,2
1608 Å
1216 Å
1025 Å
1608 Å
1216 Å
1025 Å
TEMPS
2
4
6
8
1
2
3
minutes
heures

FIG: 7

I.2.2 - *Influences de l'état de la surface.*

Vu au microscope électronique, l'aspect superficiel d'une couche mince se présente, suivant la technique d'observation et le grossissement utilisés, sous l'aspect des figures 8 et 9. La première photographie est une réplique au carbone d'une couche d'aluminium, préparée sous vide ; la seconde est une vue de profil des aspérités d'une couche de fluorure de calcium. Les imperfections apparentes de ces surfaces montrent qu'elles diffèrent beaucoup des modèles théoriques supposés parfaitement plans. Cependant, des expériences précises |24| réalisées dans le domaine du visible et de l'infrarouge ont montré que les couches minces préparées par évaporation sur des supports plans diffusaient très peu le rayonnement lumineux, l'influence de la rugosité étant d'autant plus grande que la longueur d'onde d'étude est plus courte. Cette action a été étudiée et évaluée de façons différentes par *BOUSQUET* |25| et *BENNETT* |26|.

Selon *BENNETT* |27|, on peut écrire le facteur de réflexion d'une couche mince de rugosité σ (σ étant la hauteur moyenne des irrégularités par rapport au plan moyen z = 0) *(Annexe V)* sous la forme :

$$R = R_o \, e^{-\left(\frac{4\pi\sigma}{\lambda}\right)^2 \cos\theta} \qquad \text{I.31}$$

où, R_o est le facteur de réflexion de la surface parfaitement plane, θ l'angle d'incidence, λ la longueur d'onde d'étude. On suppose en outre une répartition des irrégularités suivant une loi gaussienne.

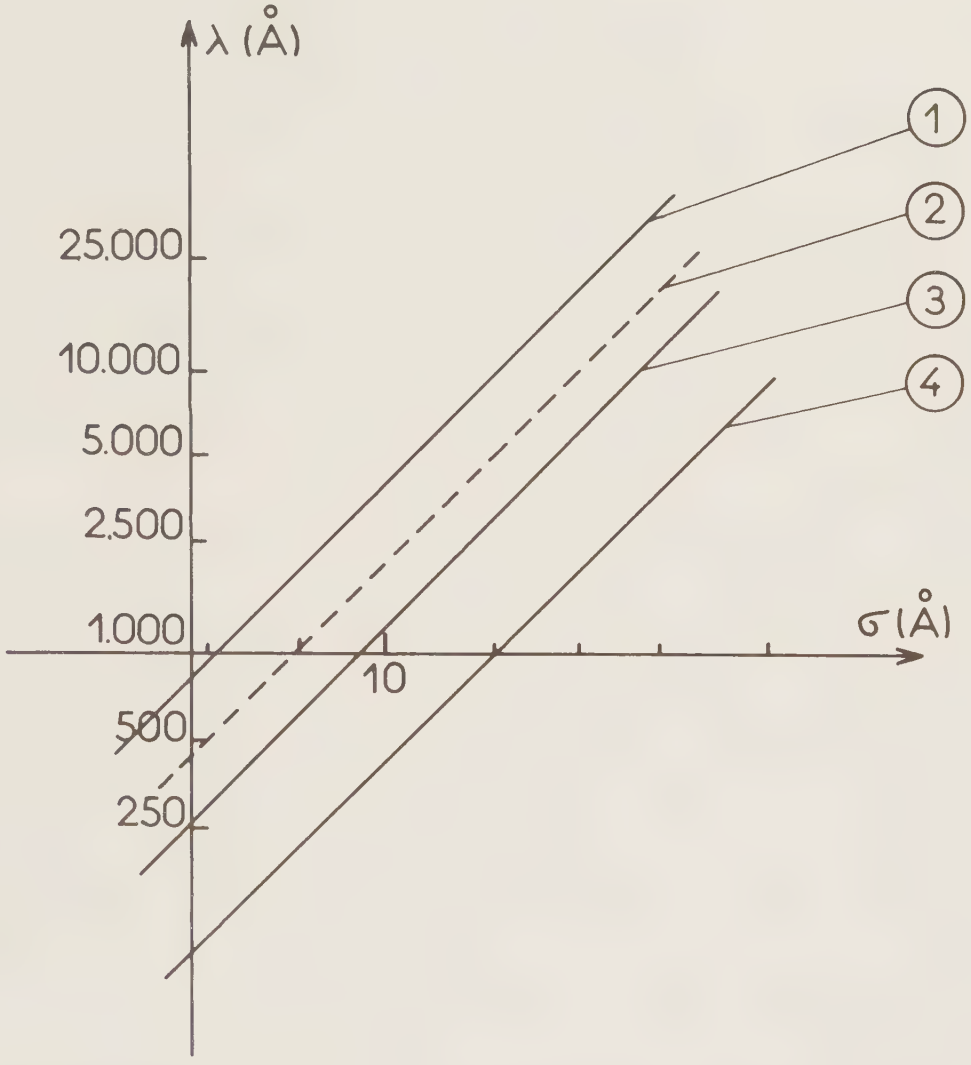
Nous reproduisons sur la figure 10, d'après |26|, les erreurs auxquelles on peut s'attendre sur la valeur du facteur de réflexion (en fonction de la longueur d'onde d'étude) de surfaces de rugosités variables.

Ces valeurs sont calculées dans le cas de l'incidence normale. Ainsi, par exemple, des valeurs de σ de 4 à 5 Å (ce qui représente la rugosité des surfaces les plus planes que l'on puisse réaliser actuellement |26|) introduisent une erreur de 0,5 % sur R, pour les longueurs d'onde supérieures à 1000 Å.

De plus, pour certains matériaux, le phénomène de diffusion peut être accompagné, du fait de la rugosité des dépôts, d'un phénomène

FIG _8

FIG _9



(1) $\Delta R_1 = \bullet 1\%$

(2) $\Delta R_1 = \bullet 5\%$

(3) $\Delta R_1 = 1\%$

(4) $\Delta R_1 = 10\%$

FIG:10

de résonance entre les ondes incidentes et les ondes de plasma de surface : l'énergie absorbée par le plasmon après désexcitation de celui-ci, est diffusée sous forme de rayonnement électromagnétique dans tout l'espace, frustrant ainsi d'une partie de son intensité le rayonnement réfléchi dans la direction spéculaire, comme nous le verrons plus en détail au chapitre III, 2ème partie.

I.2.3 - *Influences des conditions de préparation.*

A ces effets de surface qui prennent une importance relative d'autant plus grande que les ondes "voient" une faible épaisseur de la couche mince étudiée, il convient d'ajouter les défauts internes des couches, mal observables et peu connus ; on sait seulement qu'ils dépendent beaucoup des conditions de préparation des échantillons.

Parmi tous les facteurs intervenant au cours de la formation des dépôts (température du support, nature et état de celui-ci, vitesse d'évaporation, épaisseur des dépôts, distance d'évaporation, tension interne, mobilité des atomes sur le support, coefficient de collage, etc...), nous ne pourrons généralement en contrôler effectivement que 2 ou 3. En définitive, pour des couches minces réalisées dans les mêmes conditions, nous retiendrons les valeurs des couches qui présentent les meilleures qualités en réflexion dans l'ensemble du domaine spectral exploré. La reproductibilité des échantillons est jugée satisfaisante lorsque les valeurs du pouvoir réflecteur coïncident à ± 0,5 % près. Les propriétés optiques concerneront ainsi les échantillons préparés dans les conditions indiquées.

I.2.4 - *Caractères généraux du dispositif expérimental "souhaitable".*

En tenant compte des remarques précédentes, le dispositif expérimental doit nous permettre :

1°) soit de nous rapprocher des conditions idéales souhaitables pour l'application de la théorie électromagnétique de façon à ce que l'influence des défauts soit petite vis à vis des erreurs systématiques rencontrées dans les mesures photométriques,

2°) soit de disposer d'éléments de contrôle suffisamment précis pour évaluer d'une part l'importance des défauts, d'autre part en

mesurer les effets par une étude systématique. Nous devrons :

- *Pour tenir compte de la pollution superficielle*, procéder à la réalisation et à l'observation des échantillons sous ultra-vide, $p < 10^{-9}$ T, ce qui nécessite des moyens de pompage propre. Notre choix s'est porté sur un groupe composé d'une pompe à titane et d'un sublimateur de titane sur parois refroidies à l'azote liquide, le contrôle de la pression étant réalisé à l'aide de jauges de pression totale et de jauges de pression partielle (dans certains cas, la nature des gaz ayant plus d'importance que la pression totale de l'atmosphère résiduelle). Nous aurons ainsi la possibilité d'admettre dans l'enceinte de mesure un gaz choisi et nous pourrons étudier son action (en fonction du temps ou de la pression par exemple) sur le matériau observé.

- *Pour évaluer l'influence de la rugosité*, utiliser des supports: soit plans (dans la limite des possibilités du polissage, les disques de pyrex fournis toujours par le même établissement sont de qualités assez voisines d'un échantillon à l'autre, comme nous le verrons au chapitre III), soit de rugosité variable (obtenue par évaporation de couches diélectriques d'épaisseur et de nature différentes, selon la technique de BENNETT [28]). Les mesures optiques permettront de caractériser la rugosité des surfaces employées mais nous pourrons également, à l'aide d'un microscope électronique, observer les surfaces et, sinon quantitativement, du moins qualitativement, donner une explication à certaines observations, (§ *III.2.1*).

- *Pour la préparation des dépôts*, contrôler le plus grand nombre de paramètres intervenant dans leur réalisation. Ainsi, pour chaque matériau étudié, la température du support sera toujours la température ambiante, la distance d'évaporation et la nature des creusets resteront toujours identiques.

Par contre, nous pourrons faire varier la vitesse de formation des dépôts et leur épaisseur, ce contrôle étant effectué en cours de préparation à l'aide d'un quartz piézoélectrique et, après l'étude optique, par un examen au microscope interférentiel.

Chapitre II

Le dispositif permettant la détermination du pouvoir réflecteur, d'un échantillon dans un domaine spectral donné, est représenté schématiquement par la figure 11. Il comprend essentiellement une source de lumière (1), un appareil dispersif (2), un détecteur de flux lumineux (3). Pour un angle d'incidence θ donné et pour une longueur d'onde λ, le pouvoir réflecteur $R(\lambda,\theta)$ s'exprime par le rapport entre la valeur de l'intensité lumineuse réfléchie (I_θ) sur l'échantillon (E) et la valeur de l'intensité incidente (I_o). Afin d'effectuer une mesure absolue correcte de $R(\lambda,\theta)$, il est nécessaire que I_o soit constant durant la mesure, ou que ses variations soient bien déterminées.

- Première Partie -

II.1 - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE.

II.1.1 - Monochromateur. (Fig. 11)

Le monochromateur (M) à réseau concave et incidence normale que nous utilisons est du type Romand-Vodar |29| |30|. Il nous permet d'obtenir, à la fente de sortie F_2 un rayonnement monochromatique dont la longueur d'onde peut varier entre 500 et 3000 Å. Nous avons utilisé un réseau Bausch & Lomb de 1200 traits par mm,"blazé"à 1500 Å et présentant une surface rayée de 9 x 5 cm. Suivant les largeurs d'utilisation des fentes réglables d'entrée et de sortie F_1F_2, la limite de résolution varie de 0,5 à 5 Å environ. Le dispositif d'entraînement du réseau peut être commandé, soit par un moteur synchrone pour des mesures effectuées par défilement continu en longueurs d'onde, soit manuellement pour des mesures réalisées longueur d'onde par longueur d'onde.

Dans l'ultraviolet lointain, les trajets optiques doivent s'effectuer sous vide afin d'éviter l'absorption par l'atmosphère. Le monochromateur est maintenu à une pression de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-5} torr grâce à un groupe de pompage composé d'une pompe primaire (4), d'une pompe secondaire à vapeur d'huile (5) munie d'un baffle refroidi à l'eau (6) et d'un piège à azote liquide (7). A ce monochromateur, nous

1 source U.V
2 réseau
3 détecteur
4 pompe primaire
5 pompe secondaire
6 piege N_2 liquide
7 baffle
8 vannes
9 jauge - pression

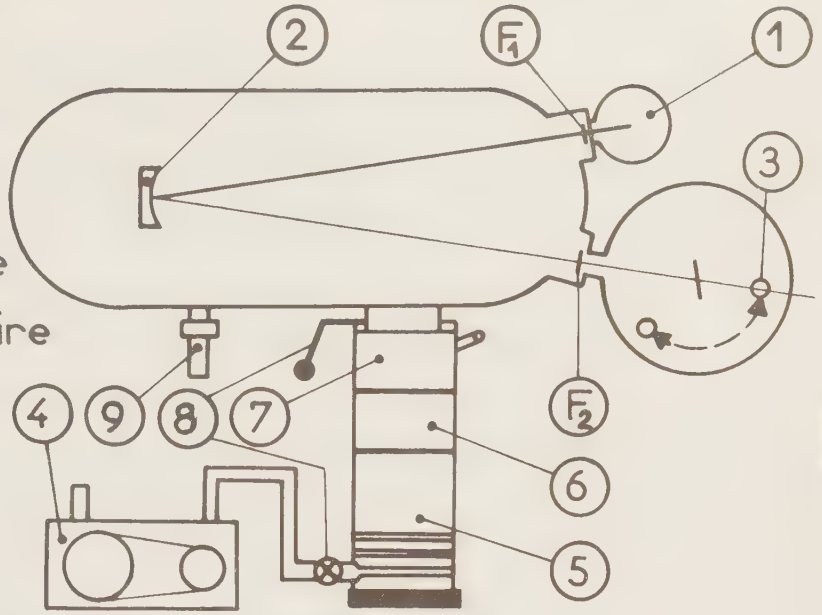


FIG: 11

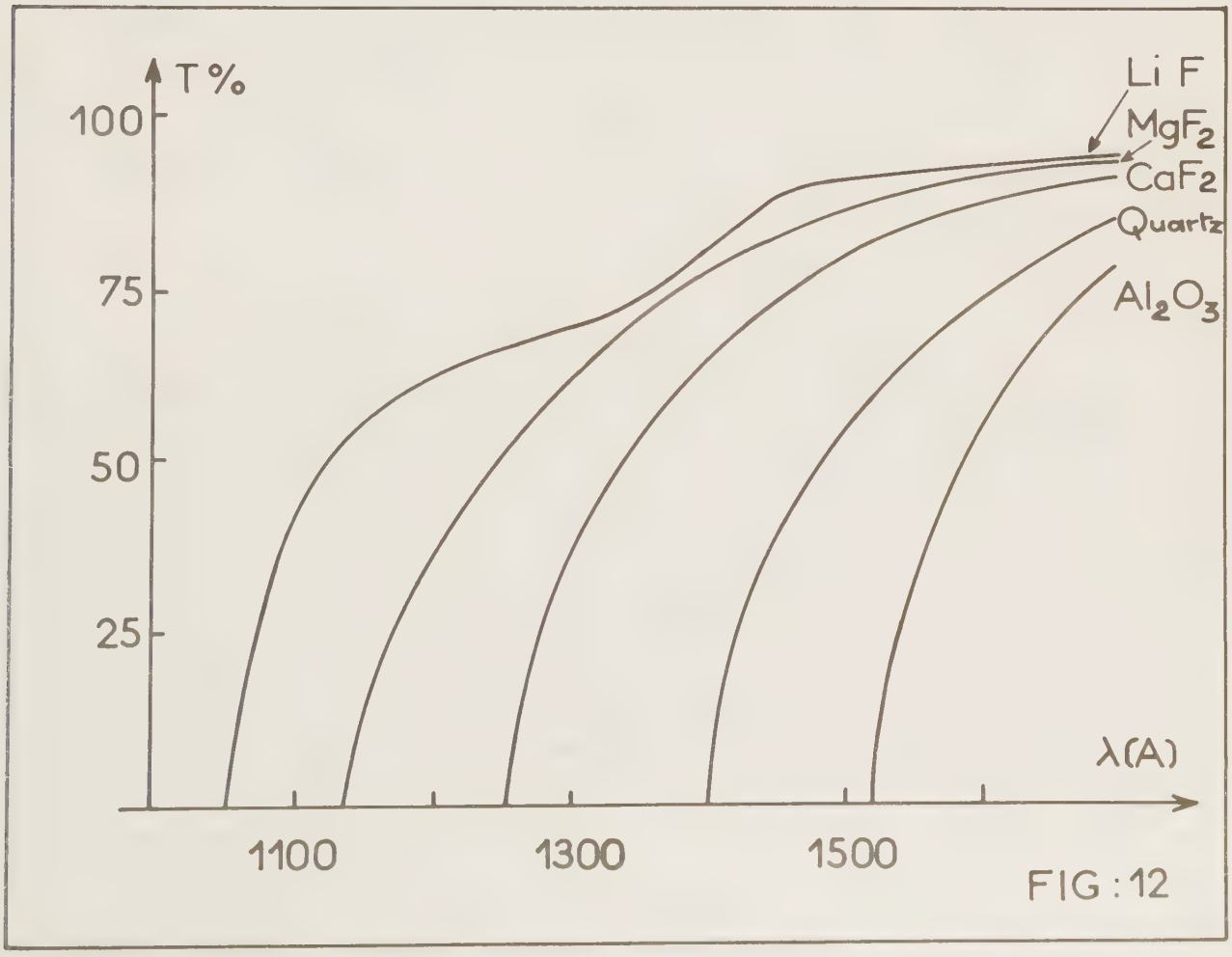


FIG : 12

avons adapté deux appareils de mesures distincts : le premier pour les mesures optiques dans le domaine de longueurs d'onde supérieures à 1100 Å, le second pour le domaine de longueurs d'onde inférieures à 1300 Å, la région commune de 200 Å, pouvant servir à des vérifications.

II.1.2 - *Dispositif de mesures pour la région spectrale comprise entre 1100 et 2500 Å.*

Dans cette région spectrale, nous pouvons utiliser des lentilles ou des fenêtres de matériau transparent susceptibles de supporter des différences de pression de l'ordre de 1 atmosphère. La figure 12 |31| |32| représente les coefficients de transmission des matériaux les plus utilisés dans l'ultraviolet pour la réalisation des fenêtres, lentilles et prismes. Nous avons retenu le fluorure de lithium car il présente le coefficient de transmission le plus élevé vers les courtes longueurs d'onde (λ coupure = 1050 Å). L'utilisation de fenêtres nous permet ainsi d'isoler complètement l'enceinte de mesure (où doit régner une pression inférieure à 5.10^{-10} torr) du reste de l'appareillage (où les pressions sont supérieures à 10^{-6} torr). Pour cette même région spectrale, il n'existe pas encore de détecteurs "commerciaux" étuvables à 200° C pouvant être placés directement dans l'enceinte à ultravide. Nous avons adopté pour les mesures optiques un montage différent permettant la comparaison de l'intensité de la lumière réfléchie par la couche étudiée et l'intensité de la lumière réfléchie par une couche étalon.

a) Source de rayonnement (fig. 13).

C'est une source à décharge sans fenêtre |33|. Elle est constituée essentiellement d'un capillaire (1) en pyrex de 6 mm de diamètre, maintenu entre 2 électrodes (2)(3) massives en aluminium. Chacune de ces parties est refroidie par circulation d'eau. De l'hydrogène circulant sous pression réduite (1 à 2 mm de mercure) dans le capillaire est excité par une différence de potentiel alternative appliquée aux bornes des électrodes. En fonctionnement permanent, la tension d'utilisation est de l'ordre de 1000 à 1500 volts, le courant étant d'environ 300 milliampères. Le débit d'hydrogène est réglé par un robinet à pointeau (4) ; l'évacuation de celui-ci s'effectue par la fente d'entrée (F_1) à l'aide du système de

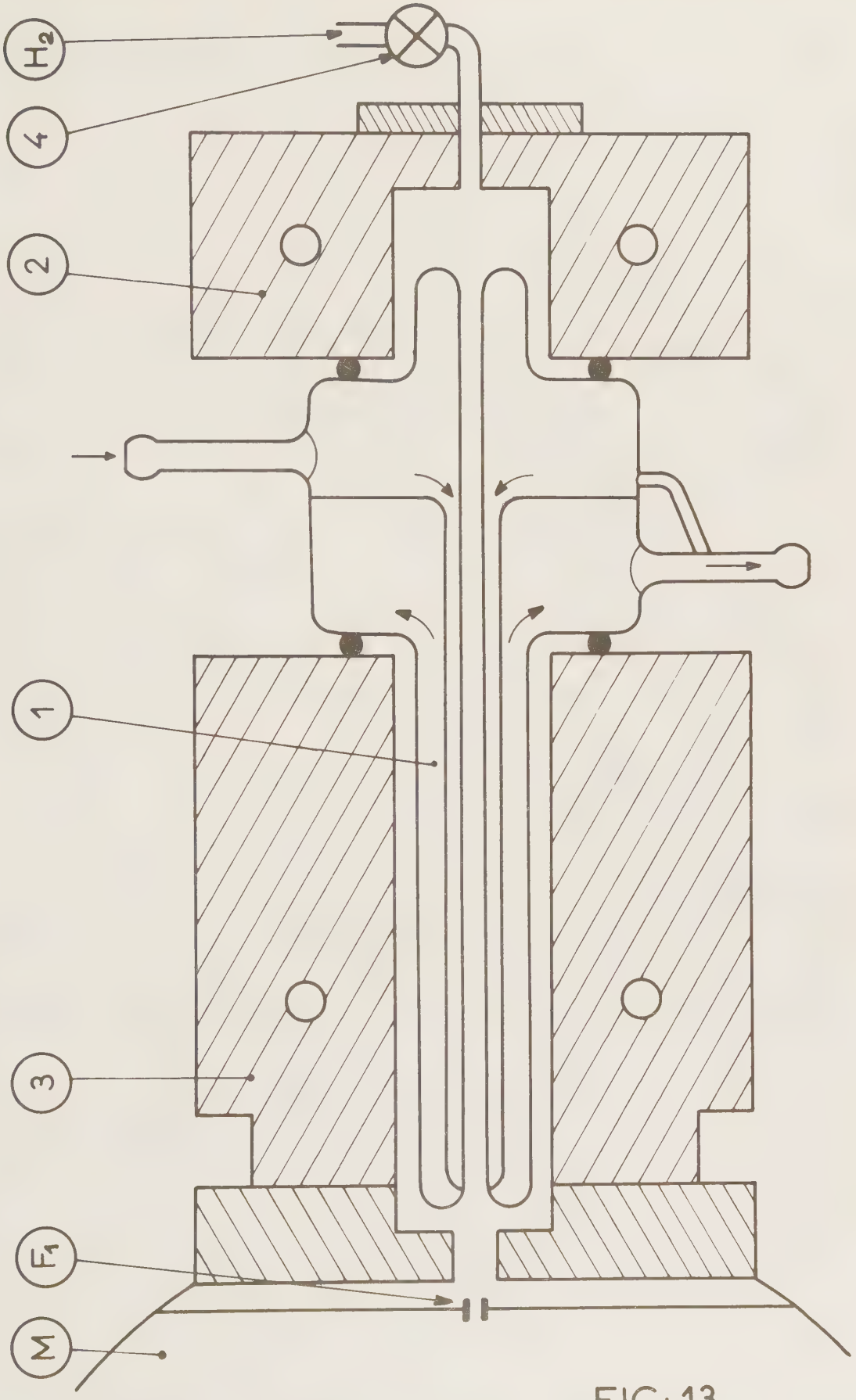


FIG: 13

pompage du monochromateur . Le spectre fourni par la lampe est formé d'un spectre de raies entre 920 et 1650 Å et d'un spectre continu pour les longueurs d'onde supérieures à 1650 Å.

b) Enceinte intermédiaire (fig. 14).

Fixée entre la fente de sortie F_2 du monochromateur et l'enceinte à ultravide (6), elle est munie :

- *de deux miroirs* inclinés à 45° (1) distants de 2 à 3 mm. Le faisceau émergeant du monochromateur (2) est ainsi séparé en deux parties. La première partie (3) réfléchie vers un photomultiplicateur témoin (4) sert à contrôler les fluctuations éventuelles de la source. La seconde partie (5) constitue le faisceau lumineux utilisé pour les mesures dans le réflectomètre (6).

- *d'une lentille* convergente en fluorure de lithium (7) assurant la focalisation sur l'échantillon du faisceau (5) destiné aux mesures.

- *d'un soufflet* étanche (8) donnant les degrés de liberté nécessaires aux réglages optiques. Dans cette enceinte, une pression inférieure à 10^{-4} torr est entretenue par le système de pompage du monochromateur à travers la fente de sortie F_2.

c) Réflectomètre (fig. 14, 15, 16).

C'est un cylindre (C) en acier inoxydable amagnétique portant les accessoires nécessaires pour l'évaporation des matériaux à étudier et pour les mesures optiques. Il est relié à un banc de pompage à ultravide (non représenté sur ces figures) composé d'une pompe ionique à titane et d'un sublimateur de titane sur parois cryogéniques. Après 10 heures d'étuvage à 300° C la pression obtenue dans le réflectomètre est inférieure à 5.10^{-10} torr |34|.

Les principaux accessoires utilisés sont :

- *deux passages de courant* (12) (Fig. 14) soudés sur une bride (13) permettant le chauffage par effet Joule des creusets (14) contenant le produit à évaporer. Ces passages céramique-métal peuvent supporter des intensités de l'ordre de 200 ampères sous une tension de 6 à 12 volts.

- *une jauge* (1) (Fig. 15) destinée aux mesures de pressions totales comprises entre 5.10^{-11} et 10^{-4} torr.

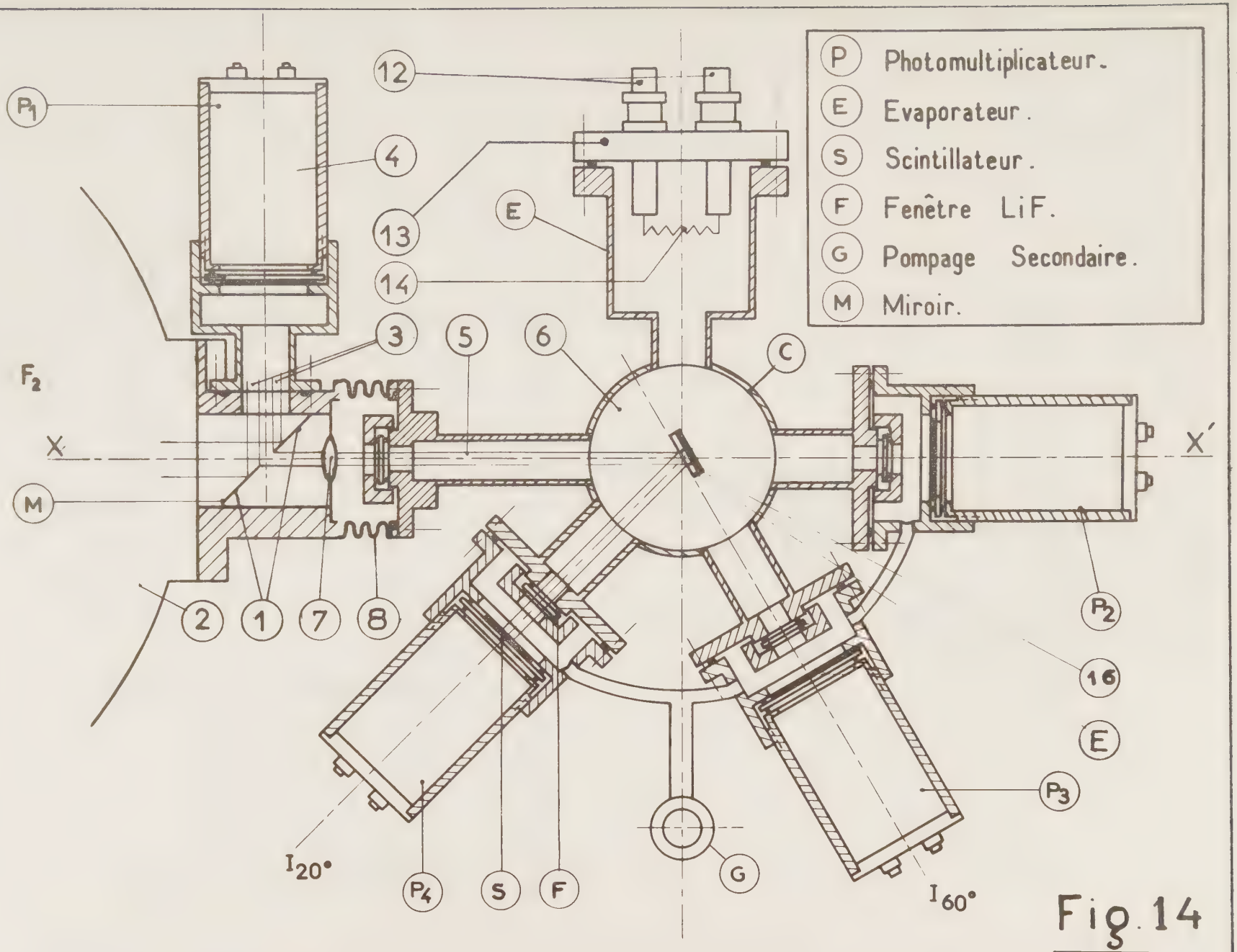

P Photomultiplicateur.
E Evaporateur.
S Scintillateur.
F Fenêtre LiF.
G Pompage Secondaire.
M Miroir.
P1
12
4
13
E
14
3
5
6
C
F2
X
X'
M
2
1
7
8
P2
16
E
P3
I20°
P4
S
F
G
I60°

Fig. 14

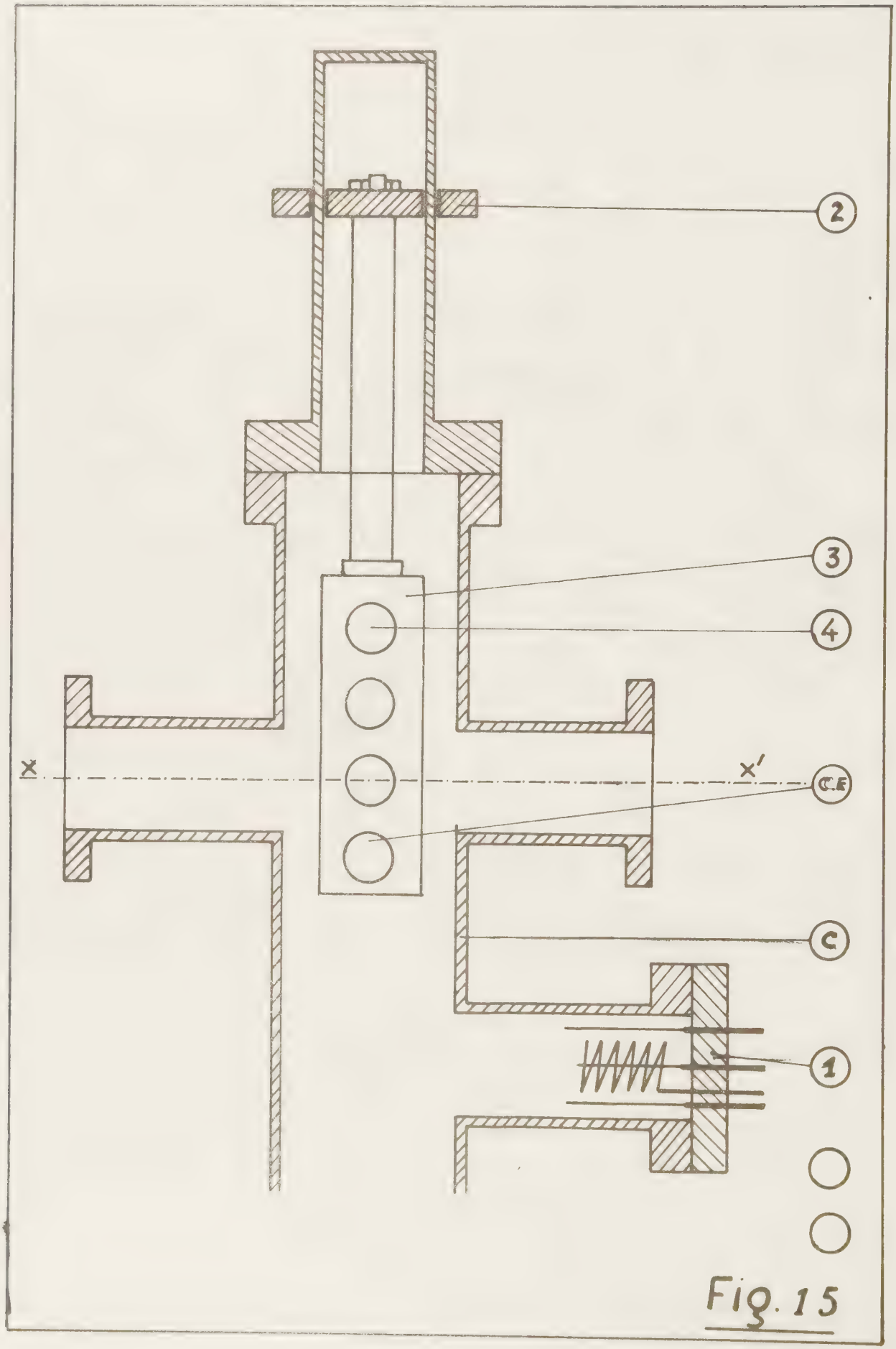


Fig. 15

- *un mouvement magnétique* (2) (Fig. 15) assurant le déplacement en translation et en rotation d'un porte-échantillons (3) sur lequel sont fixés des disques de pyrex polis (4) servant de support aux dépôts à étudier.

- *des fenêtres* (F) (Fig. 14), de fluorure de lithium poli (diamètre 20 mm, épaisseur 2 mm). Le détail d'une fenêtre est représenté sur la fig. 16. Les disques de fluorure de lithium (3) sont adaptés sur les embases métalliques (1) à l'aide de joints spéciaux (2) réalisés au laboratoire |35|. Le joint est constitué d'une bague d'aluminium cylindrique dont les bases ont été profilées au tour de manière à former une gorge destinée à recevoir un joint torique en indium. Les lèvres d'aluminium (BB') servent à contenir l'indium (A) pendant les périodes d'étuvage (300° C). Le profil des arêtes en aluminium a été étudié pour subir un écrasement progressif et surtout pour que l'augmentation de volume de l'indium (2 % au cours de la fusion) tende à les plaquer contre les surfaces de contact. Les différences de dilatations auxquelles sont soumis les constituants sont compensées par le jeu de rondelles élastiques en acier (type Belleville ou Schnorr) (5) maintenues par des écrous de serrage. Pour une fenêtre de ce type, le taux de fuite mesuré au spectromètre de masse calé sur l'hélium a été évalué à 5.10^{-11} atm.cm^3.sec.$^{-1}$*. Plusieurs étuvages successifs à 300°C suivis de retour à la température ambiante ont été effectués sans démontage des fenêtres. Seul le fluage de l'aluminium nécessite périodiquement un léger serrage des vis de pression. Nous avons reproduit sur la figure 17 les résultats d'une étude |35| permettant de comparer l'étanchéité de ce genre de joint à des types de joints d'un emploi plus courant. Pour plus de précision, nous avons employé la méthode de recherche des fuites par accumulation d'hélium. L'amplitude du signal détecté au spectromètre de masse est ainsi représentée en fonction d'accumulation d'hélium pour :

- un joint en aluminium à arête saillante (1),
- un joint torique en or (2),
- le joint utilisé dans notre travail (3).

---

* *1 atm cm^3 s^{-1} ≃ 0,1 Pascal m^3 s^{-1}*

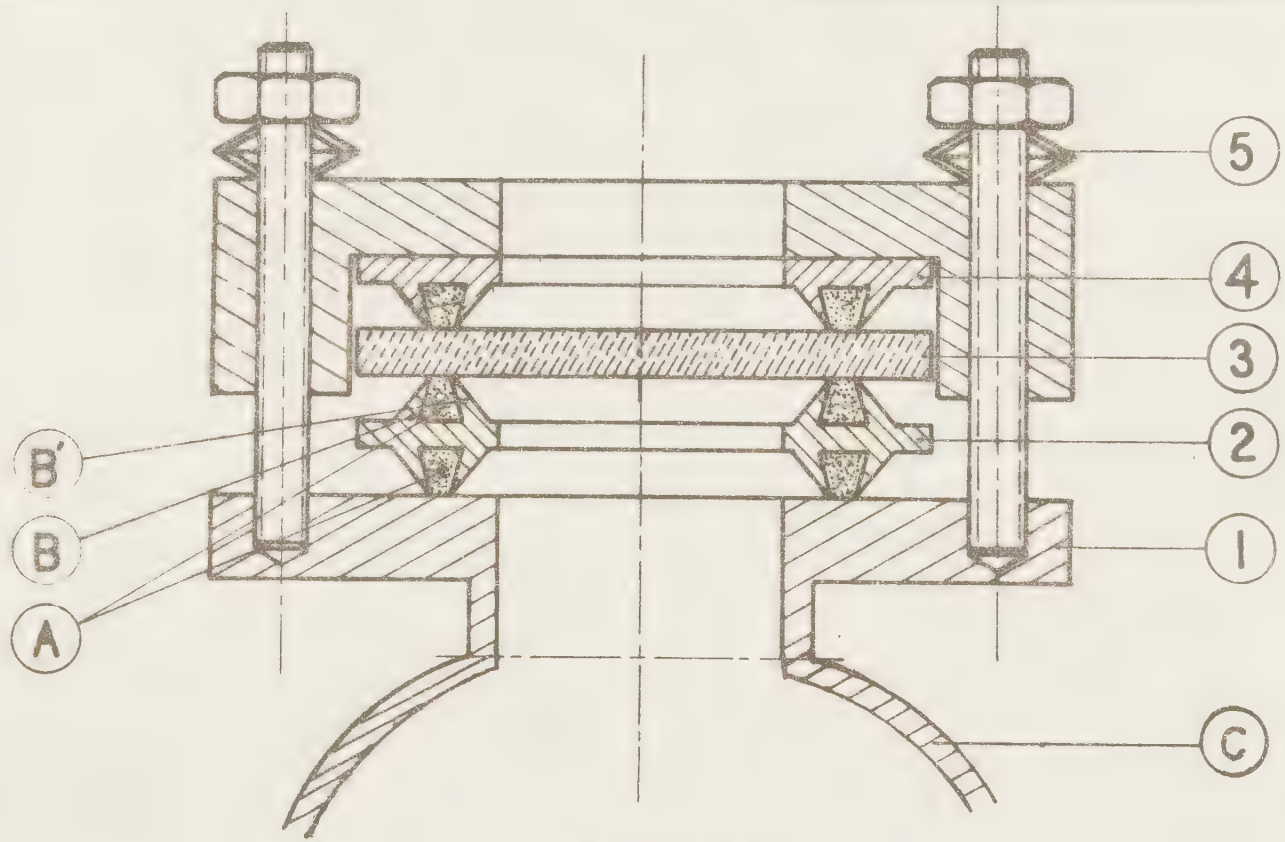


Fig. 16

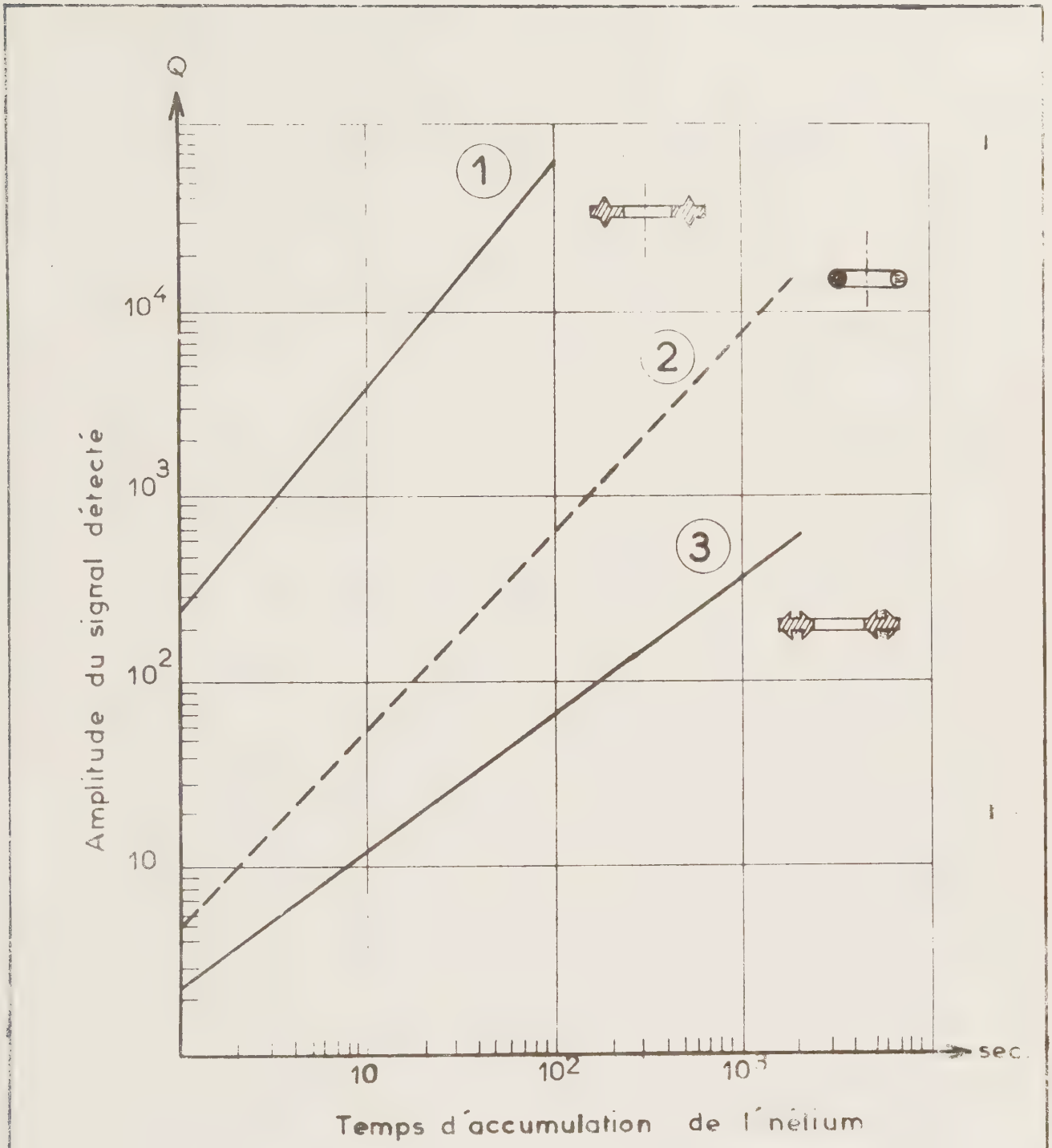

Q
1
2
3
10^4
10^3
10^2
10
Amplitude du signal détecté
10
10^2
10^3
sec.
Temps d'accumulation de l'hélium

FIG -17

Nous avons préféré utiliser ce dispositif démontable au procédé consistant en une brasure au chlorure d'argent de disques de fluorure de lithium sur cylindre mince d'acier inoxydable. En effet, l'utilisation de brasure ne permet pas le démontage du disque cristallin pour effectuer des mesures annexes, par exemple, la vérification des propriétés optiques des disques; par contre ces mesures ne sont possibles que pour des pièces peu importantes. De plus, en cas de bris, la réparation est souvent longue, et toujours très coûteuse. Enfin, une brasure entre des éléments de nature différente peut constituer une gêne pour un nettoyage efficace et provoquer des tensions.

- *Dispositif de détection et de mesure de rayonnement.* Comme nous l'avons signalé, il n'existe pas actuellement de détecteurs étuvables à 200 ou 300 degrés Celsius permettant d'effectuer des mesures optiques dans le domaine de longueurs d'onde supérieures à 1200 Å. Le dispositif de mesures que nous utilisons est représenté sur la figure 14. Les récepteurs P_3, P_4 (photomultiplicateurs du type 150 AVP - Radiotechnique) sont placés à l'extérieur de l'enceinte à ultra-vide où sont préparés les échantillons. Ils servent à mesurer le flux lumineux transmis par les fenêtres après réflexion sur l'échantillon (E). Ces fenêtres sont disposées de manière que l'angle d'incidence du rayonnement sur l'échantillon soit égal à 20° et à 60°. Le détecteur P_2 permet la mesure du rayonnement transmis par l'échantillon. Les enveloppes des photomultiplicateurs utilisés n'étant pas transparentes au rayonnement de longueurs d'onde inférieures à 3500 Å environ, un scintillateur (terphényl) déposé sous forme de couche mince |36| sur un disque de pyrex (S) sert de convertisseur de lumière. Pour éviter l'absorption du rayonnement par l'atmosphère, un dispositif de pompage (G) entretient une pression inférieure à 10^{-4} torr entre les fenêtres (F) et les photomultiplicateurs $(P_2)(P_3)(P_4)$. Le pont d'alimentation des dynodes, photocathode et anode, d'un photomultiplicateur est réalisé d'après un schéma fourni par le constructeur, pour la détection d'un flux de lumière continu. La tension d'alimentation peut varier entre 1200 et 1500 volts suivant l'amplification désirée. La résistance de charge est adaptée à un dispositif d'enregistrement à 2 voies permettant d'inscrire simulta-

nément les valeurs des intensités débitées dans la résistance de charge, du photomultiplicateur témoin (P_1) d'une part, et du photomultiplicateur choisi pour la mesure (P_2, P_3 ou P_4) d'autre part. Une unité de détection formée d'une fenêtre, d'un scintillateur et d'un photomultiplicateur n'étant pas rigoureusement identique aux autres, les mesures des valeurs absolues de pouvoir réflecteur sont faites par comparaison à une couche "étalon" disposée sur le porte-échantillon (CE) (Fig. 15). Les valeurs du pouvoir réflecteur de cet étalon sont mesurées, en fonction de la longueur d'onde avant son introduction dans la chambre à ultra-vide, dans un réflectomètre annexe |37|, puis vérifiées après l'expérience dans le même réflectomètre annexe. Nous avons utilisé comme lame étalon des couches minces d'or déposées sur des disques de pyrex polis et des couches minces d'aluminium, protégées par du fluorure de magnésium, déposées également sur disques de pyrex polis.

II.1.3 - *Dispositif de mesures pour le domaine de longueurs d'onde compris entre 500 et 1300 Å.*

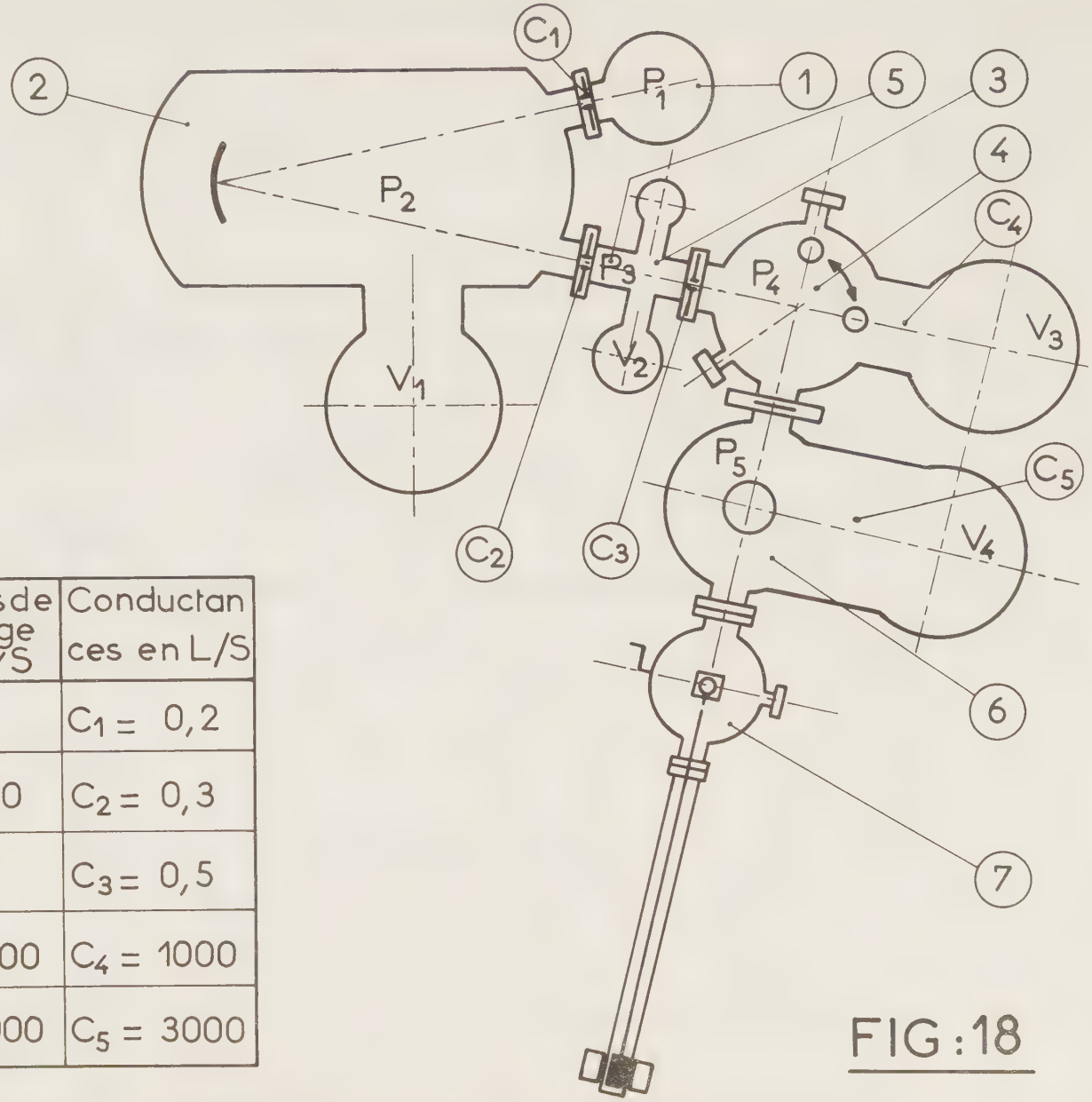
Dans ce domaine de longueurs d'onde, contrairement à ce que nous avons vu pour la région spectrale 1200-2500 Å, il existe des récepteurs commerciaux étuvables pouvant être incorporés dans l'enceinte à ultra-vide conformément au schéma représenté par la figure 11. Il s'agit de photomultiplicateurs sans fenêtre , étuvables entre 200 et 300 degrés Celsius, pouvant subir périodiquement des séjours à la pression atmosphérique sans altération notable de leurs propriétés. Les photocathodes sont en général métalliques (tungstène, or, acier inoxydable) |38| |39| et présentent un seuil de sensibilité aux environs de 1300 Å (ou des énergies supérieures à 10 eV environ). Ces récepteurs ont l'avantage de ne pas être sensibles à la lumière de grande longueur d'onde diffusée par les appareils dispersifs ; ni à la lumière du jour (avantage appréciable lorsque certains réglages sont nécessaires pendant les mesures optiques) Leur bruit de fond inférieur à celui des récepteurs à photocathode en Sb-Cs par exemple, permet d'obtenir un rapport signal sur bruit élevé et en conséquence une détection plus précise des signaux de faible intensité. Par contre, pour ce domaine spectral, il n'existe pas de matériau transparent au rayonnement pouvant être utilisé comme fenêtre susceptible de résister à une différence de pression de l'ordre de 1 atmosphère. Afin

d'éviter les échanges gazeux entre des enceintes maintenues à de légères différences de pressions (quelques dixièmes de torr), nous pouvons utiliser une "pseudo-fenêtre" |40|. Celles-ci sont réalisées en déposant sur une grille de microscope électronique une couche très mince (200 à 500 Å) d'un matériau présentant une bonne transparence au rayonnement dans la région spectrale de mesure. Cependant, leur emploi exige un système de pompage tel que la pression soit également répartie de part et d'autre des deux faces. Leur coefficient de transmission n'étant jamais supérieur à 20 ou 30 % environ, nous avons préféré adopter un montage sans fenêtre, schématisé par la figure 18. Des diaphragmes de faibles conductances C_1, C_2, C_3 limitent les échanges gazeux entre les différentes enceintes (1,2,3,4). La pression dans chaque enceinte est entretenue par les dispositifs de pompage P_1 P_2 P_3, de manière que la pression totale dans la "chambre" où sont étudiés les échantillons reste inférieure à 5.10^{-10} torr.

Les calculs relatifs aux conductances et vitesses de pompage rassemblés dans le tableau de la figure 18 sont donnés dans l'annexe III Pour pouvoir maintenir une pression inférieure à 5.10^{-10} torr dans la chambre de mesures (4), il est nécessaire que la pression du gaz dans la lampe soit inférieure à 5.10^{-2} torr. La source de lumière décrite au § II.1.2 a) ne pouvant convenir puisque la pression du gaz utilisé pendant son fonctionnement est supérieure à 10^{-1} torr, nous avons été amenés à réaliser une source sans fenêtre fonctionnant avec un gaz sous faible pression.

a) Source ultraviolette fonctionnant avec un gaz sous faible pression (Fig. 19).

Cette source est une lampe à décharge du type Penning. Elle est constituée d'une anode cylindrique (1) séparée par 2 manchons isolants (2) (quartz ou pyrex) des cathodes (3). L'étanchéité entre ces éléments est assurée par des joints d'indium (4). L'écrasement de ces joints s'effectue par serrage des écrous (5) disposés sur les tiges filetées (6). Pour l'observation de la décharge lumineuse, les cathodes et l'anode centrale ont été percées sur l'axe x'x d'un trou cylindrique d'environ 12 mm de diamètre. Le débit du gaz utilisé est limité par le robinet à pointeau (7) situé entre la lampe et la réserve de gaz, l'évacuation de celui-ci est assurée par le groupe de pompage du monochromateur (M) à travers la fente d'entrée F_1. Une jauge (8) permet la lec-



Pressions en Torr	Vitesses de pompage en L/S	Conductances en L/S
$P_1 < 10^{-2}$		$C_1 = 0,2$
$P_2 < 10^{-5}$	$V_1 = 650$	$C_2 = 0,3$
$P_3 < 10^{-7}$	$V_2 = 10$	$C_3 = 0,5$
$P_4 < 10^{-9}$	$V_3 = 1000$	$C_4 = 1000$
$P_5 < 10^{-9}$	$V_4 = 3000$	$C_5 = 3000$

FIG : 18

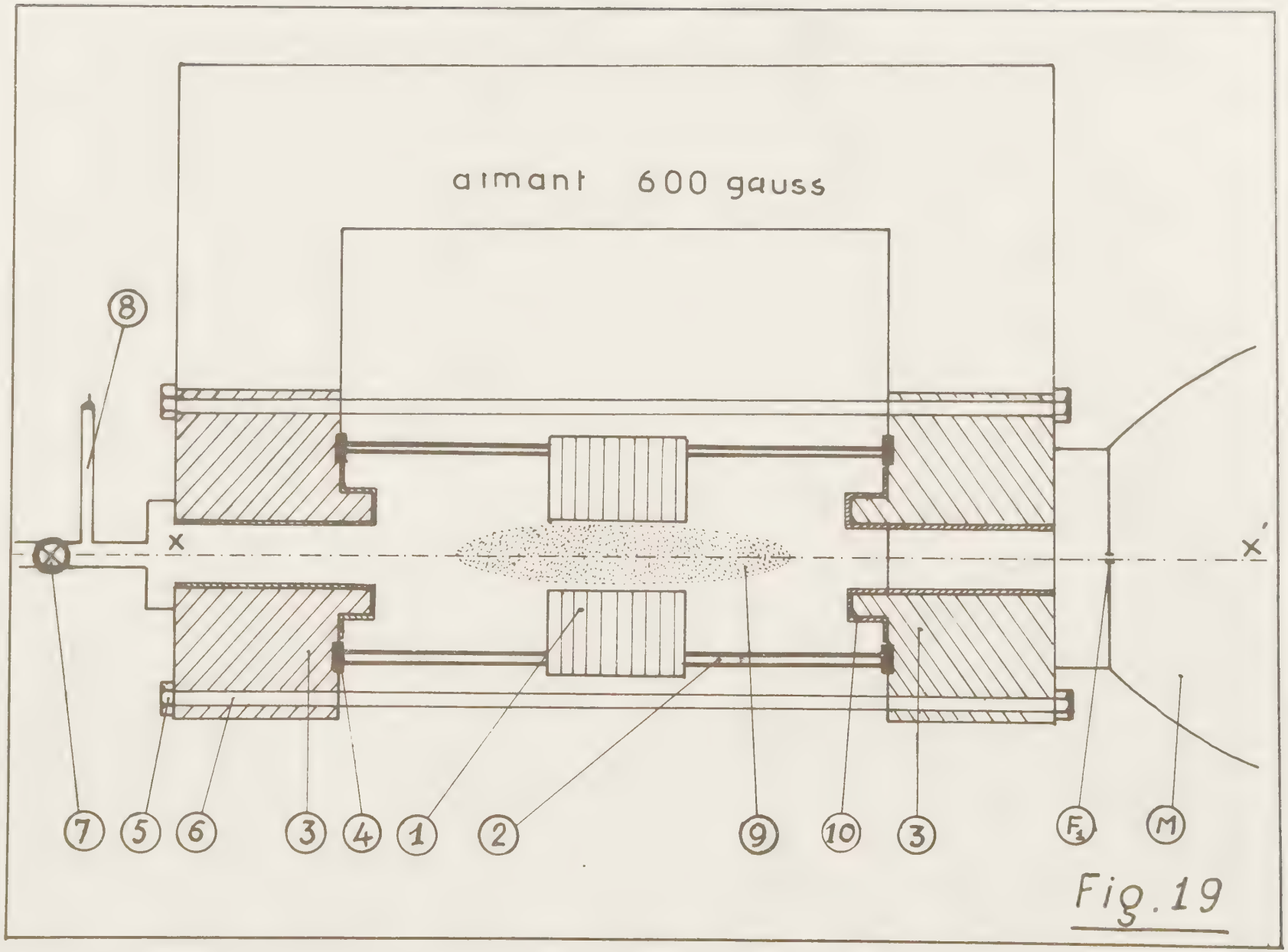


Fig. 19

ture de la pression dans la lampe, un dispositif de refroidissement à eau est employé pour éviter l'échauffement des différentes parties de la lampe, en particulier des joints d'indium (la température de fusion de l'indium est d'environ 150° C). L'intensité du champ magnétique obtenue entre les cathodes (3), à l'aide d'un aimant permanent en U (11) est de 700 gauss* environ sur l'axe x'x de la lampe. Afin de mieux canaliser les lignes de forces du champ magnétique, les cathodes ont été réalisées en fer doux. Cependant, pour éviter une pulvérisation trop importante du matériau constituant les cathodes, celles-ci ont été enveloppées aux endroits où s'effectue la décharge par de l'aluminium (10) (métal plus léger se prêtant moins bien à la pulvérisation). Une étude préalable |41| a permis de diminuer ce phénomène de pulvérisation responsable de la métallisation des parties de l'appareillage qui sont en vue directe de la décharge (réseau en particulier). La pression dans la lampe étant fixée à 5.10^{-3} torr environ, l'application d'une différence de potentiel de 1000 à 1500 volts établit sur l'axe de la lampe une décharge lumineuse de forme ellipsoïdale (9). Le courant débité dépend fortement de la pression et de la nature du gaz utilisé. Avec l'hydrogène, l'intensité de courant est de 20 à 50 mA, avec l'argon, elle est comprise entre 5 et 10 mA. Les raies spectrales obtenues avec ces deux gaz permettent de réaliser de bonnes mesures optiques entre 500 et 1300 Å. Les principales raies de l'hydrogène sont représentées figure 20 (a), celles de l'argon, figure 20 (b).

La stabilité du flux lumineux est atteinte après une demi-heure de fonctionnement environ |41| ; elle est comparable à celle obtenue à l'aide de la lampe à hydrogène décrite ci-dessus.

b) Enceinte intermédiaire avec pompage différentiel (partie (3) de la figure 18).

Elle est analogue à l'enceinte intermédiaire décrite au § II.1.2 b), mais comporte en outre :

- *un diaphragme* C_3, destiné à diminuer les échanges gazeux entre les chambres (3) et (4), qui sert aussi à limiter la surface du faisceau lumineux, afin de couvrir convenablement la photocathode du récepteur.

---

* *700 gauss = 0,07 tesla.*

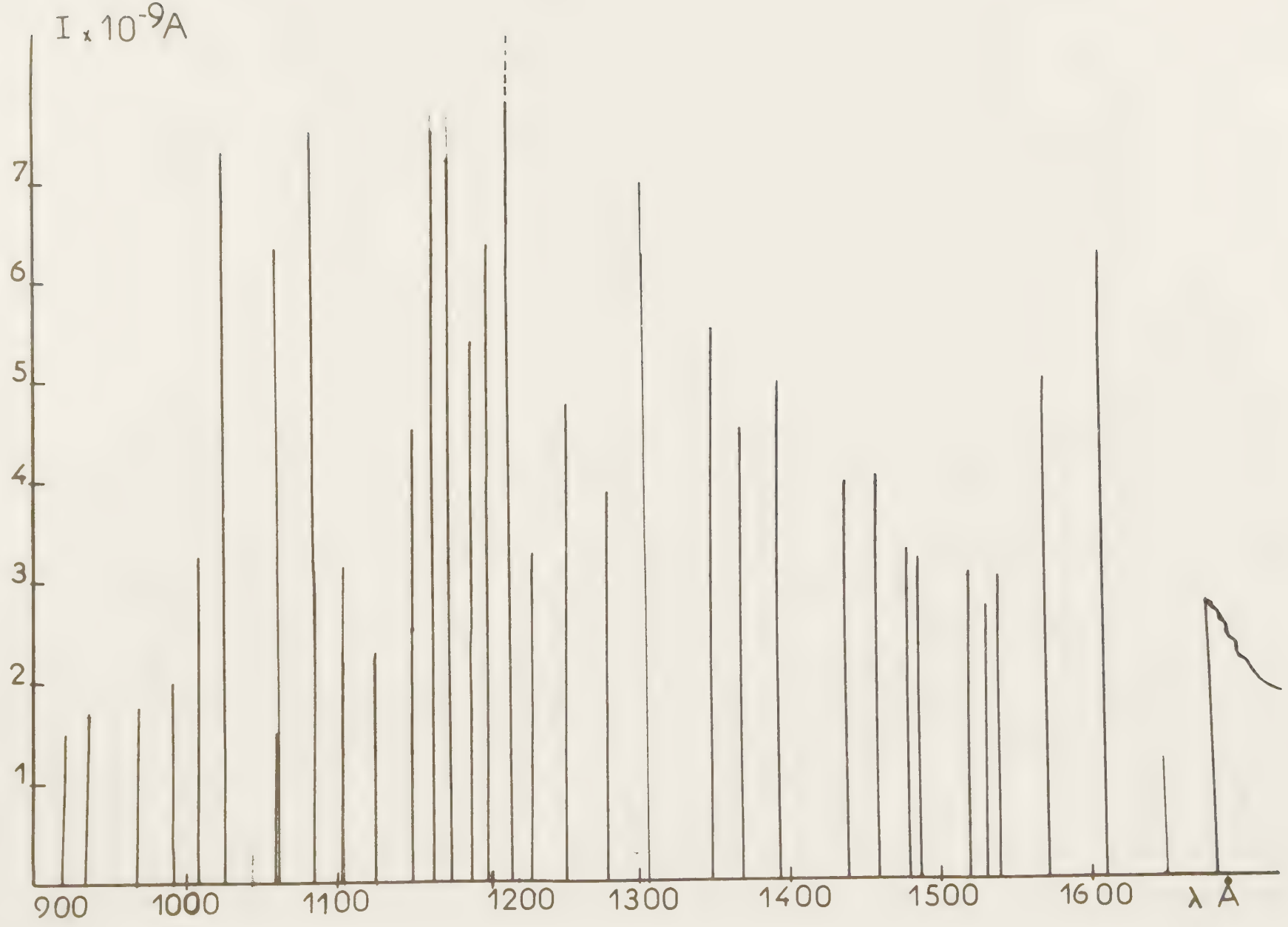


Fig. 20 (a)

SPECTRE DE L'HYDROGENE

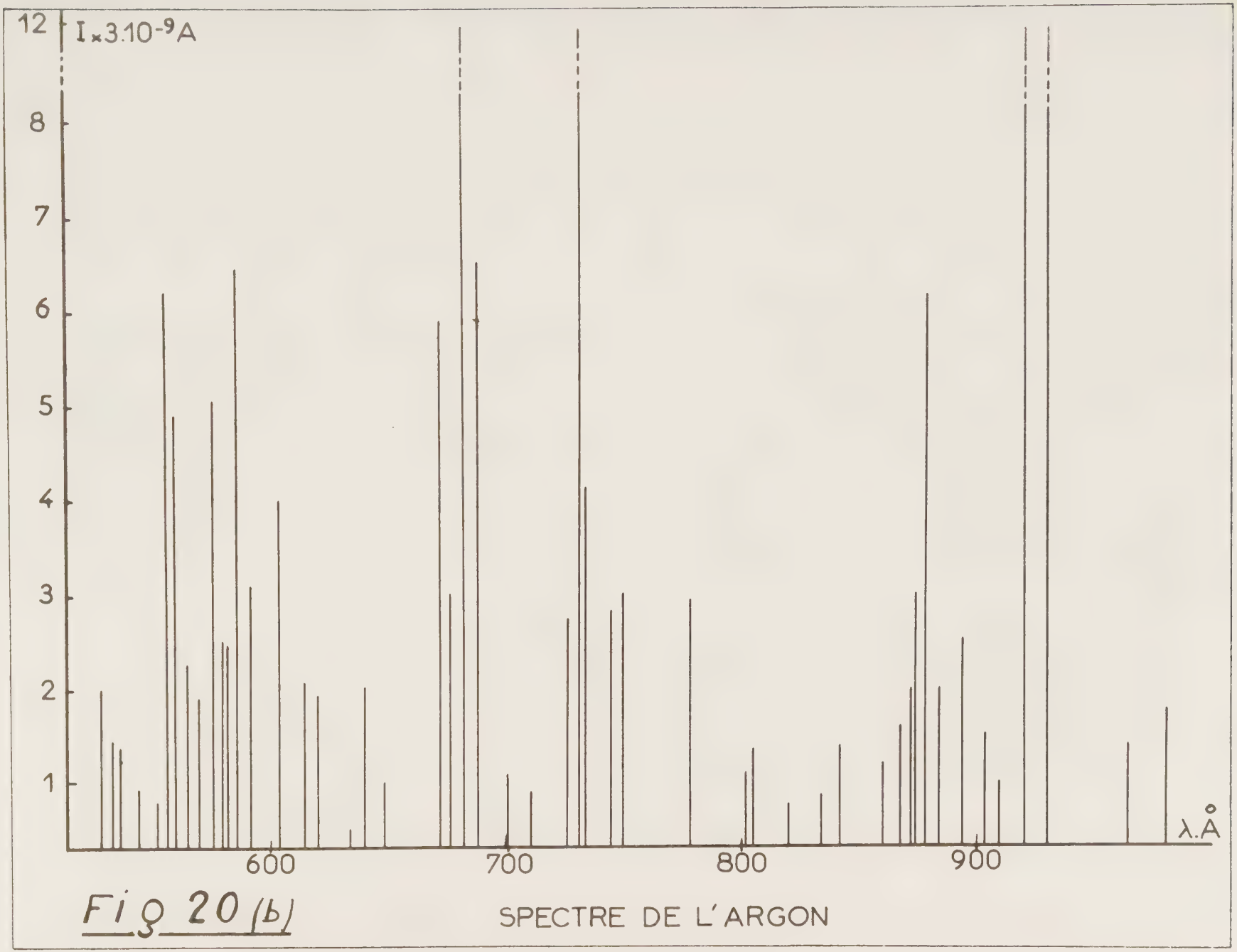


Fig 20 (b)

SPECTRE DE L'ARGON

- *une pompe ionique à titane*, de vitesse de pompage V_2 de 11 litres par seconde à 10^{-8} torr. Cette pompe sert à maintenir une pression comprise entre 10^{-8} et 5.10^{-7} torr dans l'enceinte.

- *une vanne à voie droite* étuvable à 300° C reliant cette enceinte intermédiaire à l'enceinte (4). En position fermée, cette vanne permet la séparation de l'ensemble à ultra-vide du reste de l'appareillage non étuvable. En position ouverte, elle permet le passage du faisceau lumineux issu de la fente de sortie du monochromateur.

Au moment où nous avons entrepris ce travail, la seule vanne à ultravide à voie droite |42| existant dans le commerce présentait un encombrement trop grand pour être utilisée dans notre dispositif, en particulier sa longueur (21 cm) nous imposait d'augmenter du double environ la distance entre le détecteur (D) (fig. 18) et la fente de sortie F_2 du monochromateur. En conséquence, pour conserver une tache lumineuse de surface inférieure à la surface de la photocathode du détecteur, l'intensité du flux lumineux était divisée par 4. Pour conserver une disposition plus favorable, nous avons réalisé une vanne à voie droite de faible encombrement, étuvable à 300°C. Cette vanne |43| représentée sur la figure (21), est constituée :

- *d'un système porte-joint* (J) destiné à l'obturation ou au dégagement de l'orifice A ; le déplacement du joint est assuré par une membrane (M) en acier inoxydable reliée à un bras de manoeuvre (N).

- *d'un dispositif à pas différentiel* (C) permettant la translation de l'embase métallique (B). La rotation de l'ensemble (C) communique la force nécessaire à l'écrasement du joint par l'embase (B), le joint étant maintenu sur l'autre face par l'écrou (E). Des membranes (D) assurent l'étanchéité et l'élasticité suffisante pour le déplacement de (B). Des axes de centrage (F) évitent les mouvements de rotation de (B) susceptibles d'entraîner une rupture des membranes (D). L'écrou (E) qui sert de support au joint (J) pendant les périodes de fermeture permet en outre d'effectuer très simplement l'échange d'un joint défectueux dans le démontage de la vanne. En utilisant comme joint (J) un joint aluminium-indium tel que nous l'avons décrit au § II.1.2 c), nous pouvons étuver la vanne à 300° Celsius (en position fermée seulement, car à cette température l'indium s'échapperait de son logement s'il n'était

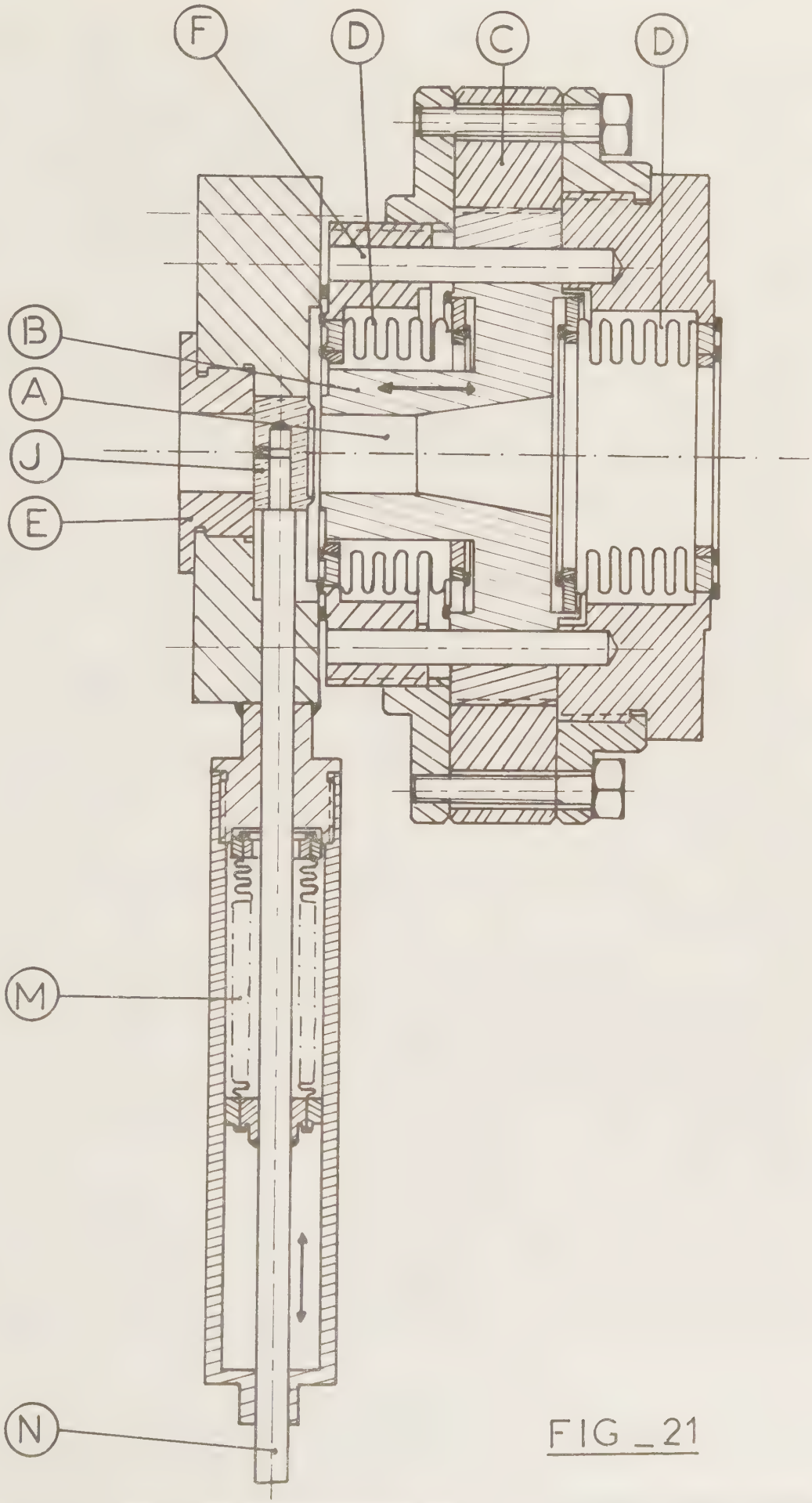


FIG _21

maintenu par l'embase (B)). Il est possible d'utiliser d'autres types de joints (joint en cuivre par exemple) le pas différentiel utilisé permettant le développement d'une force considérable. Toutes les parties en regard du vide sont dépourvues de lubrifiants. Seuls les filetages extérieurs et les axes de centrage (F) sont enduits de bisulfure de molybdène.

c) Réflectomètre sans fenêtre pour mesures sous ultra-vide.

Le dispositif permettant la réalisation des dépôts et leur étude sous ultra-vide est représenté vu de dessus sur la figure 22, vu de face, sur la figure 23. Il comprend trois parties principales :

α) Chambre de mesures. (I) Fig. 22 - Fig. 23.

C'est un cylindre d'acier inoxydable de diamètre 150 mm et de hauteur 400 mm, relié au monochromateur par l'enceinte intermédiaire et la vanne à voie droite décrite ci-dessus (seule la vanne à voie droite est représentée en (5) figure 22). Un dispositif de pompage, constitué d'une pompe ionique à titane (6), de vitesse 140 litres par seconde environ, et d'un sublimateur de titane (7) sur paroi cryogénique (8), permet d'obtenir à travers les conductances C_2, au niveau de la chambre de mesures, une vitesse de pompage d'environ 1000 litres par seconde à 10^{-10} torr (*annexe III*).

Sur ce cylindre sont reliés, par l'intermédiaire de brides (type "Conflat") et de joints (en cuivre OFHC), différents accessoires :

- *un accouplement magnétique* (1) assurant la translation ou la rotation du porte-échantillons (24) face au rayonnement incident.
- *un mouvement à soufflets* (2) portant le détecteur de rayonnement lumineux (D). Ce mouvement permet de déplacer le détecteur suivant un mouvement de rotation ou de translation par rapport à l'axe de la chambre de mesures, ou suivant une inclinaison (variable entre - 15° et + 15°) autour du porte-échantillons.
- *une jauge Bayard-Alpert* (3) qui permet l'enregistrement de la pression totale dans l'enceinte entre 10^{-4} et 5.10^{-11} torr.
- *des hublots* (4) donnant la possibilité de vérifier certains réglages optiques ou de positionner convenablement les échantillons (24).

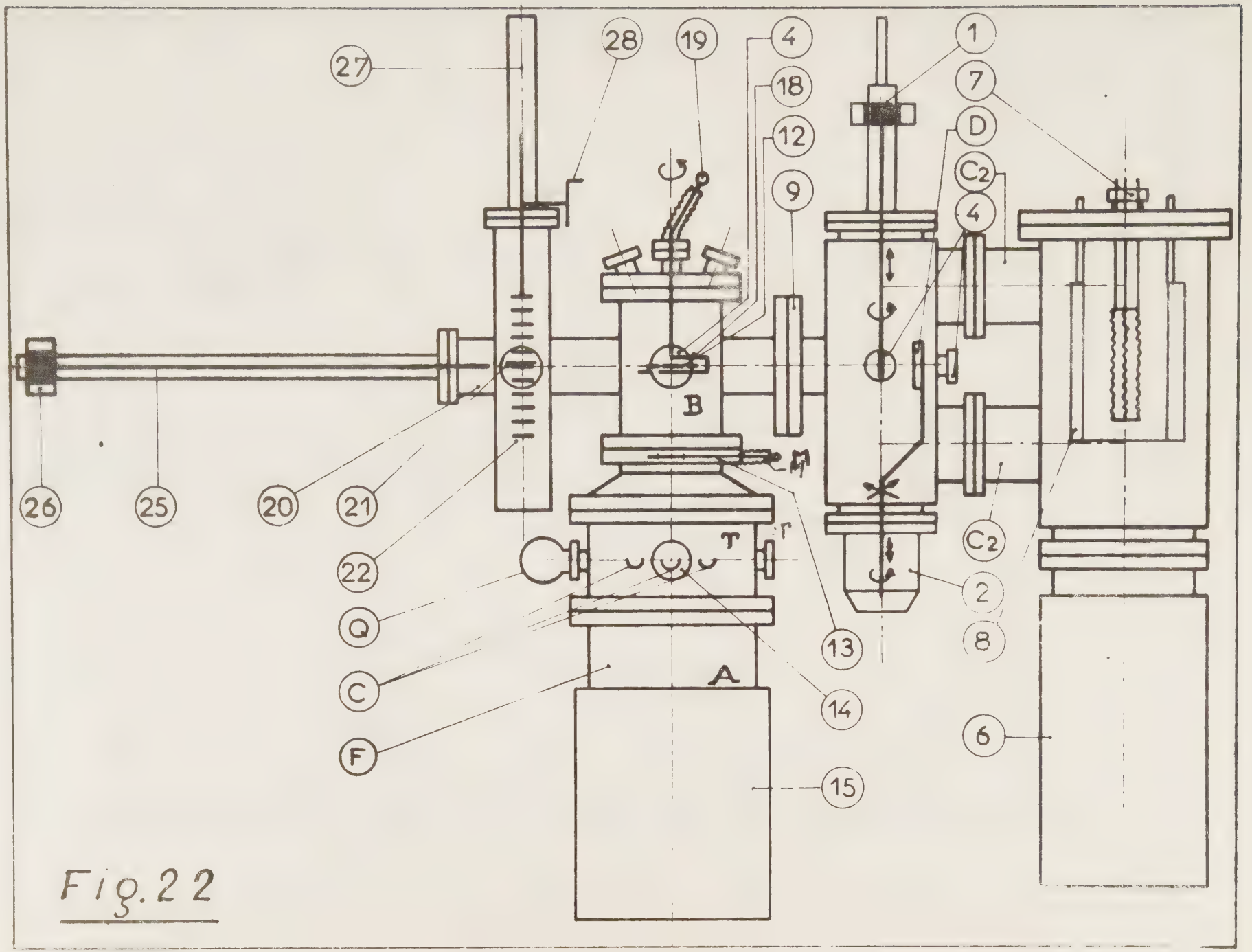


Fig. 22

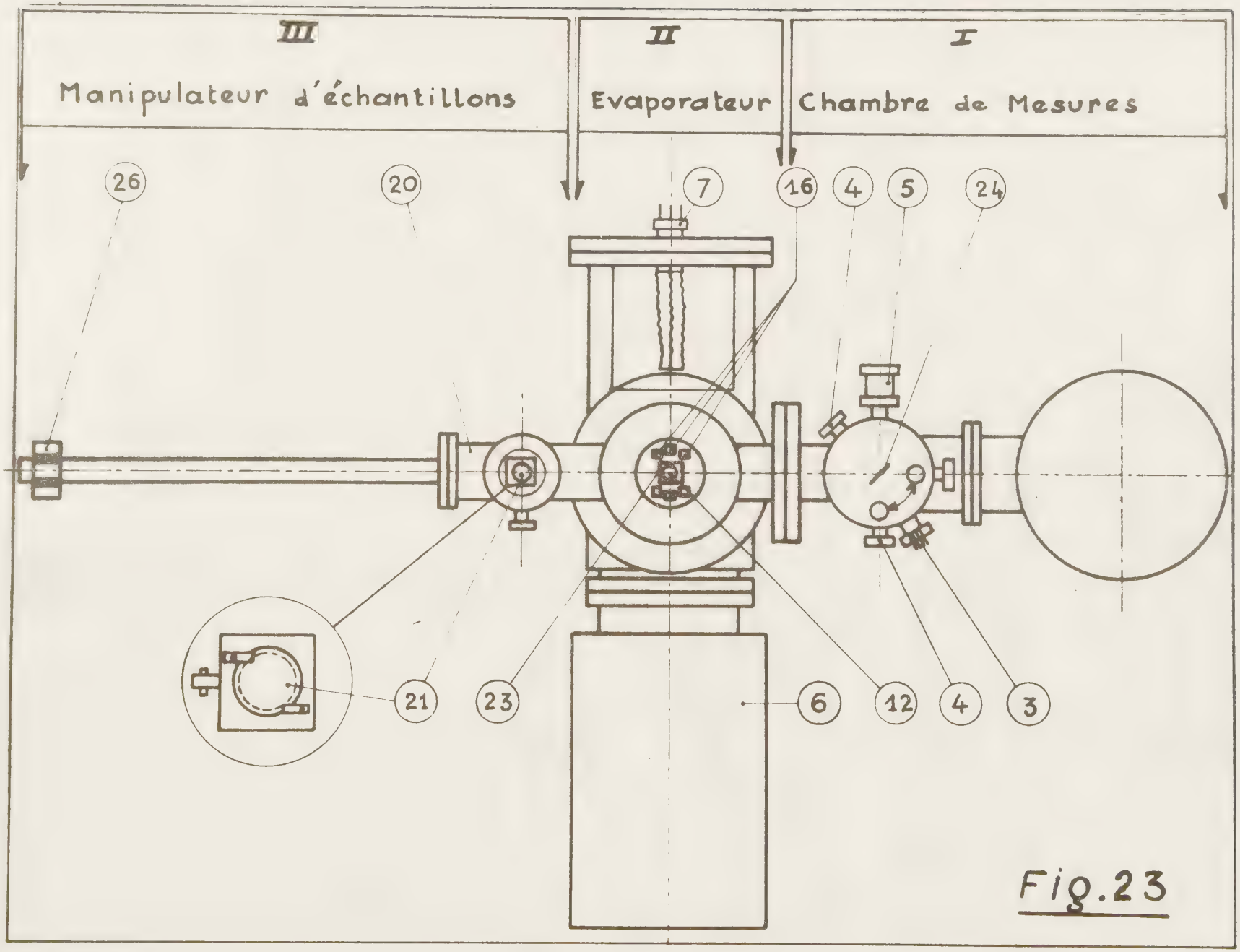

III
Manipulateur d'échantillons
II
Evaporateur
I
Chambre de Mesures
26
20
7
16
4
5
24
21
23
6
12
4
3

Fig.23

- *un spectromètre de masse* du type quadrupole |44| destiné à l'identification des différents constituants de l'atmosphère résiduelle. La pression partielle minimum détectable est de l'ordre de 5.10^{-13} torr.

- *Le détecteur* est un photomultiplicateur de type Bendix M-306 |45|. Moins encombrant que les photomultiplicateurs sans fenêtre |38|, il présente également l'avantage de posséder un bruit de fond plus faible que ceux-ci (1.10^{-12} Ampère au lieu de 1.10^{-10} A) pour un gain de 10^6. Représenté schématiquement sur la figure 24, il est constitué :

- d'une photocathode (1) reliée à une plaque rectangulaire (2) en verre sur laquelle est déposée une couche d'oxyde d'étain et d'antimoine permettant d'obtenir une bande de résistance égale à 90 mégohms.

- d'une grille (3) associée à une plaque résistante identique à la précédente.

- d'une anode en acier inoxydable (4).

- d'une série d'aimants permanents (en Alnico V) créant, entre le dispositif de plaque et de grille, un champ magnétique constant de 400 gauss environ. (Pour la clarté de la figure 19, nous n'avons pas représenté ces aimants).

Les tensions négatives appliquées pour la détection d'un flux lumineux continu sont de l'ordre de :

- 1500 volts sur la photocathode (1),
- 300 volts à l'extrémité de la bande résistante associée à la cathode,
- 1200 volts sur la grille (3).

L'extrémité de la plaque résistante associée à la grille étant reliée à la masse, l'application de ces tensions provoque l'établissement d'une différence de potentiel constante (300 volts) entre le dispositif de grille et le dispositif de cathode (gradient dirigé suivant y'y) et la chute de potentiel entre les extrémités des plaques résistantes (1200 volts) donne naissance à un gradient de potentiel dirigé suivant x'x.

Des photons d'énergie $h\nu$ (supérieurs au seuil photoélectrique de la photocathode), frappant la photocathode, provoquent l'émission d'électrons par effet photoélectrique. D'une part, les électrons émis sont accélérés par le champ électrique régnant entre les plaques et dirigés

suivant yy' (fig. 24) ; d'autre part, leur trajectoire est courbée par l'existence du champ magnétique dirigé suivant x'x. L'impact de ces électrons sur la bande résistante provoque une émission électronique secondaire. De proche en proche, une petite avalanche électronique prend naissance. Elle est recueillie sur l'anode (4). Un picoampèremètre, relié à cette anode, permet la mesure d'un courant proportionnel au flux de photons initial. Suivant la valeur des tensions appliquées, un gain de 10^6 à 10^8 peut être obtenu à l'aide de ce photomultiplicateur. Le détecteur est livré par son fabricant muni d'une photocathode en tungstène. Le seuil photoélectrique de ce matériau permet ainsi des mesures jusqu'à 1300 Å environ.

- *une bride de raccord* (9) permet la fixation, sur la chambre de mesures, de l'enceinte d'évaporation dans laquelle sont préparés les dépôts.

β) *Enceinte d'évaporation.* (II) (Fig. 22 et 23).

Elle est constituée de deux chambres (A) et (B).

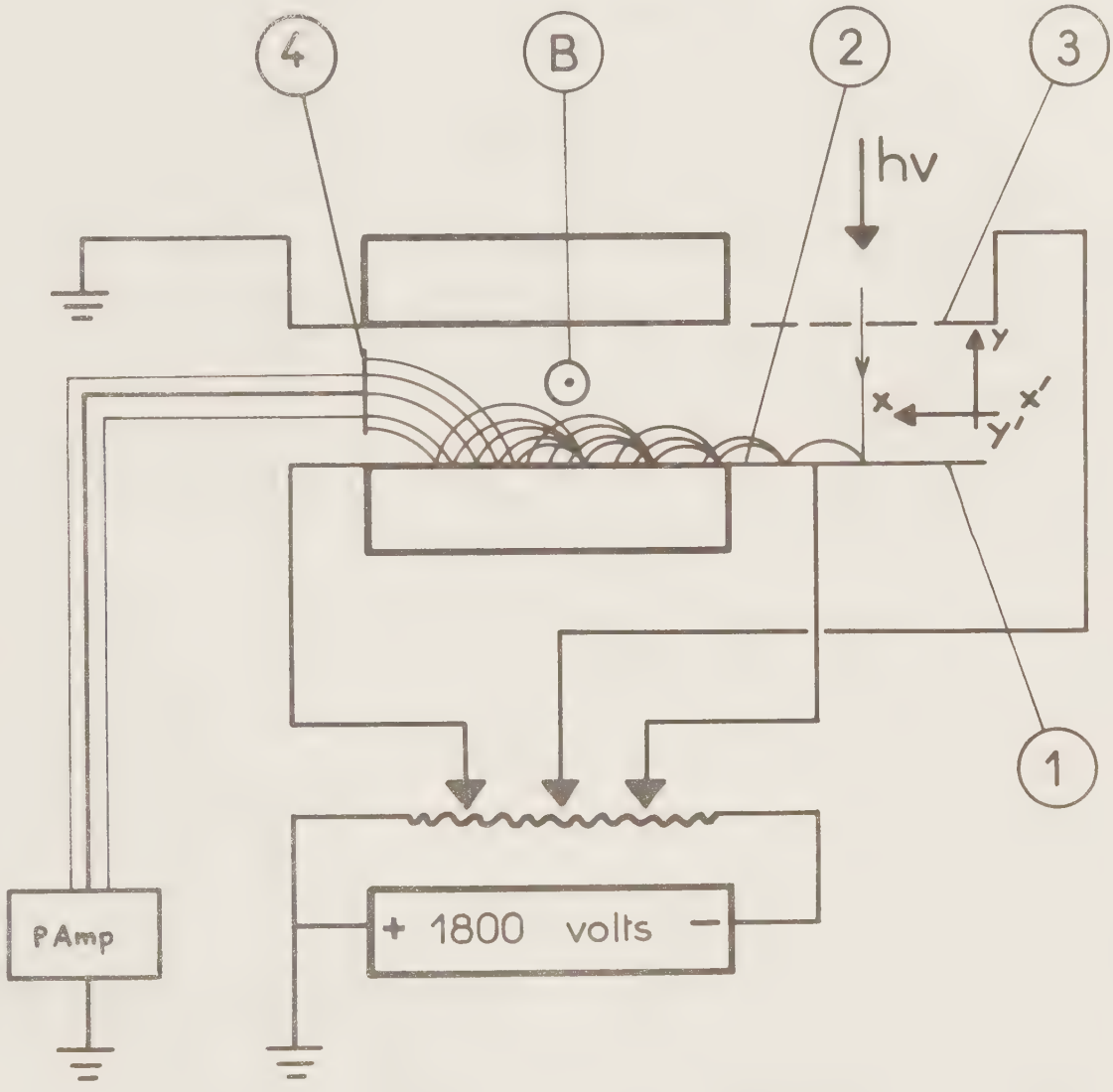
- Chambre inférieure A :

Elle comprend un dispositif de pompage (15) analogue au groupe associé à la chambre de mesures décrite précédemment. Relié par une tubulure (F) de forte conductance (ϕ = 300 mm) à la tourelle d'évaporation (T), il permet de disposer au niveau de celle-ci d'une vitesse de pompage effective de 3000 L/S (*annexe III*). Sur la tourelle d'évaporation, sont fixés :

- *trois creusets d'évaporation* (C) chauffés indépendamment par effet Joule. Les traversées étanches sont susceptibles de supporter le passage de courants d'intensité égale à 800 ampères sous une tension de 6 à 12 volts.

- *un analyseur de gaz quadrupolaire* (Q) pouvant détecter et évaluer la présence de matériaux de masse atomique comprise entre 1 et 250.

- *un hublot* (14) permettant de surveiller l'état des creusets et de leur contenu, au cours des évaporations.



1 Photocathode

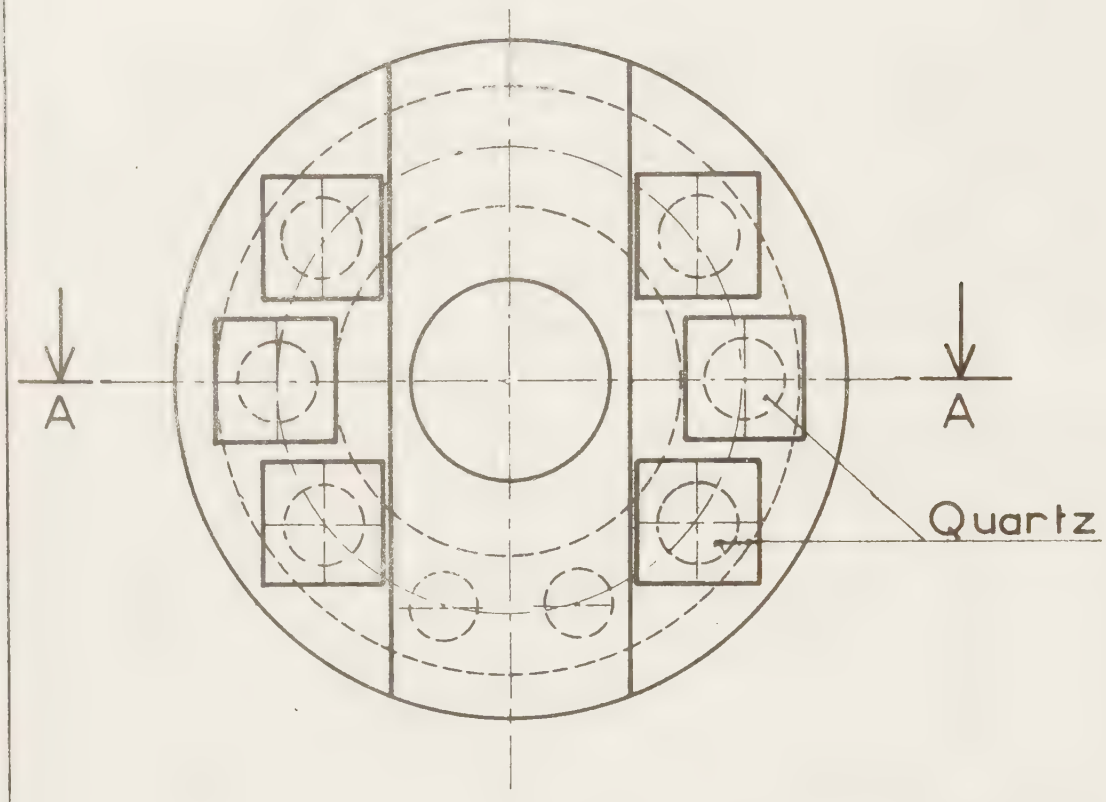
2 Bande Résistante

3 Grille

4 Anode

B Induction Magnétique

FIG: 24



Coupe A A

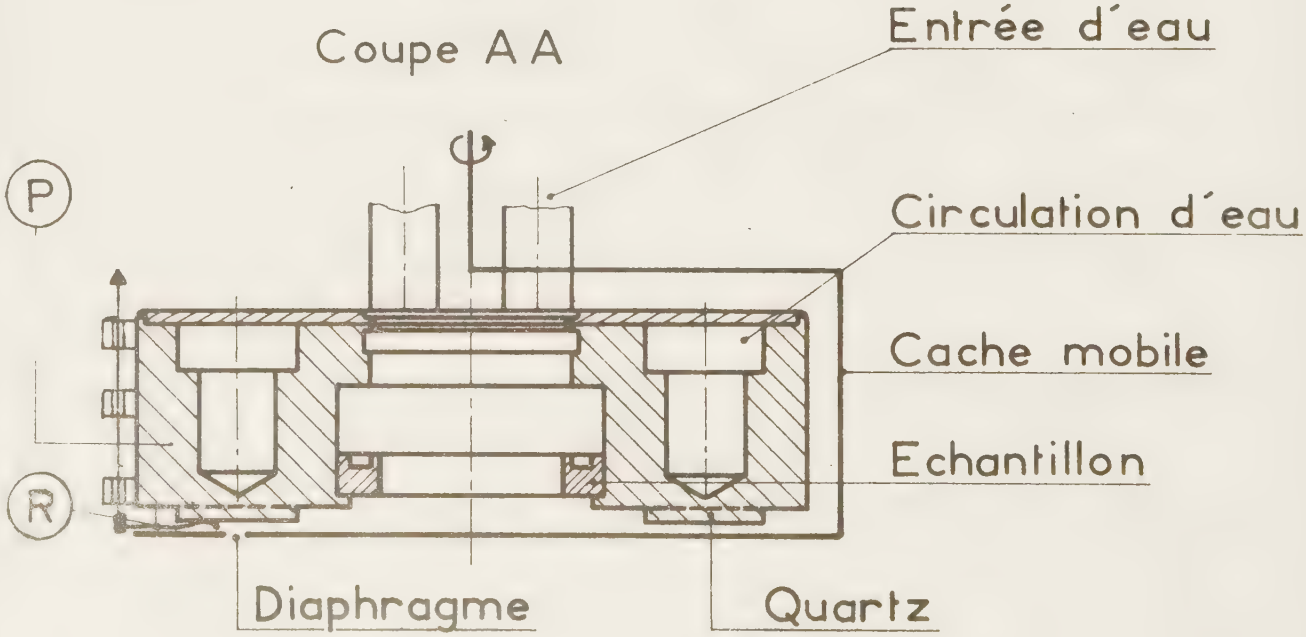


Fig. 25

- Chambre supérieure B :

Elle relie la chambre de mesures au manipulateur d'échantillons où sont stockés les supports destinés à recueillir les matériaux évaporés. Le support devant recevoir les dépôts est placé en (12) pendant l'évaporation. La durée de celle-ci est fixée par l'ouverture et la fermeture du diaphragme (13) manoeuvrable de l'extérieur à l'aide de la membrane (M). Ce diaphragme isole, en dehors du temps de formation des couches minces, l'enceinte A de l'enceinte B, réduisant ainsi au minimum les échanges gazeux entre ces deux parties. Au niveau des supports (12), nous avons installé (16) un dispositif de contrôle d'épaisseur par quartz piézoélectriques |46|. Représenté sur la figure 25, il comprend :

- *une platine* (P) constituée d'un cylindre en acier inoxydable, refroidi par circulation d'eau, sur laquelle sont disposés six quartz piézoélectriques (Q).

- *un cache mobile* portant un diaphragme et permettant de choisir le quartz de contrôle.

- *une pince ressort* (R) métallique assurant un bon contact thermique entre la paroi refroidie et les quartz et servant également de contact électrique pour transmettre vers l'appareil de contrôle les variations de fréquence du quartz pendant la formation des dépôts.

Un quartz étant saturé par un dépôt d'une épaisseur voisine de 3 à 5 µ environ, suivant la densité des matériaux évaporés, nous pouvons, avec notre dispositif (comportant 6 quartz), procéder à 60 évaporations environ avant saturation (en supposant que chaque dépôt ait une épaisseur comprise entre 3000 et 5000 Å).

En fait, les épaisseurs des dépôts étant beaucoup plus faibles, l'autonomie du dispositif de mesures permet d'effectuer plusieurs cycles de mesures avec remises à l'air et étuvages successifs avant qu'il ne soit nécessaire de procéder au renouvellement des quartz.

γ) *Passeur d'échantillons.* (III) (Fig. 22 et 23).

Les opérations préalables à toute mesure effectuée sous ultravide sont longues (étuvage) et fastidieuses (recherches de fuites, démontage, nettoyage, remontage) |47| |48| |49|. Pour limiter le nombre de ces

opérations, nous avons réalisé un manipulateur d'échantillons (20) sous ultra-vide permettant de maintenir dans un magasin une réserve de 20 échantillons. Chaque échantillon (21) placé sur une étagère (22) peut être porté de cette position de stockage à la position "évaporation" (23) puis à la position "mesure" (24) à l'aide d'un bras de manoeuvre (25) commandé extérieurement par un accouplement magnétique (26). Le déplacement vertical de l'ensemble des étagères est réalisé par la crémaillère (27) actionnée à l'aide de la manivelle (28). L'étanchéité est assurée par un soufflet déformable. Chaque échantillon peut être ainsi présenté au niveau du bras de manoeuvre. Les échantillons destinés à recevoir les dépôts sont des disques de pyrex (ϕ = 30 mm) fixés dans des cadres en acier inoxydable (21) qui peuvent être accrochés par une douille "baïonnette" (29) à l'extrémité du bras de manoeuvre. Les étagères peuvent stocker 20 échantillons réversibles numérotés, permettant ainsi la formation et l'étude (à tout instant) de 40 couches. Aucun lubrifiant n'est utilisé ; les points de friction sont recouverts d'un dépôt électrolytique d'or ; tous les roulements et douilles à billes permettant les mouvements de rotation et de translation sont en acier inoxydable. L'ensemble de ce dispositif est étuvable à 250°C. La photo 26 représente la vue d'ensemble correspondant au schéma de la figure 23. La photo 27 montre le dispositif intérieur de déplacement vertical d'échantillons. La photo 28 montre le dispositif de stockage et de prise en charge des échantillons.

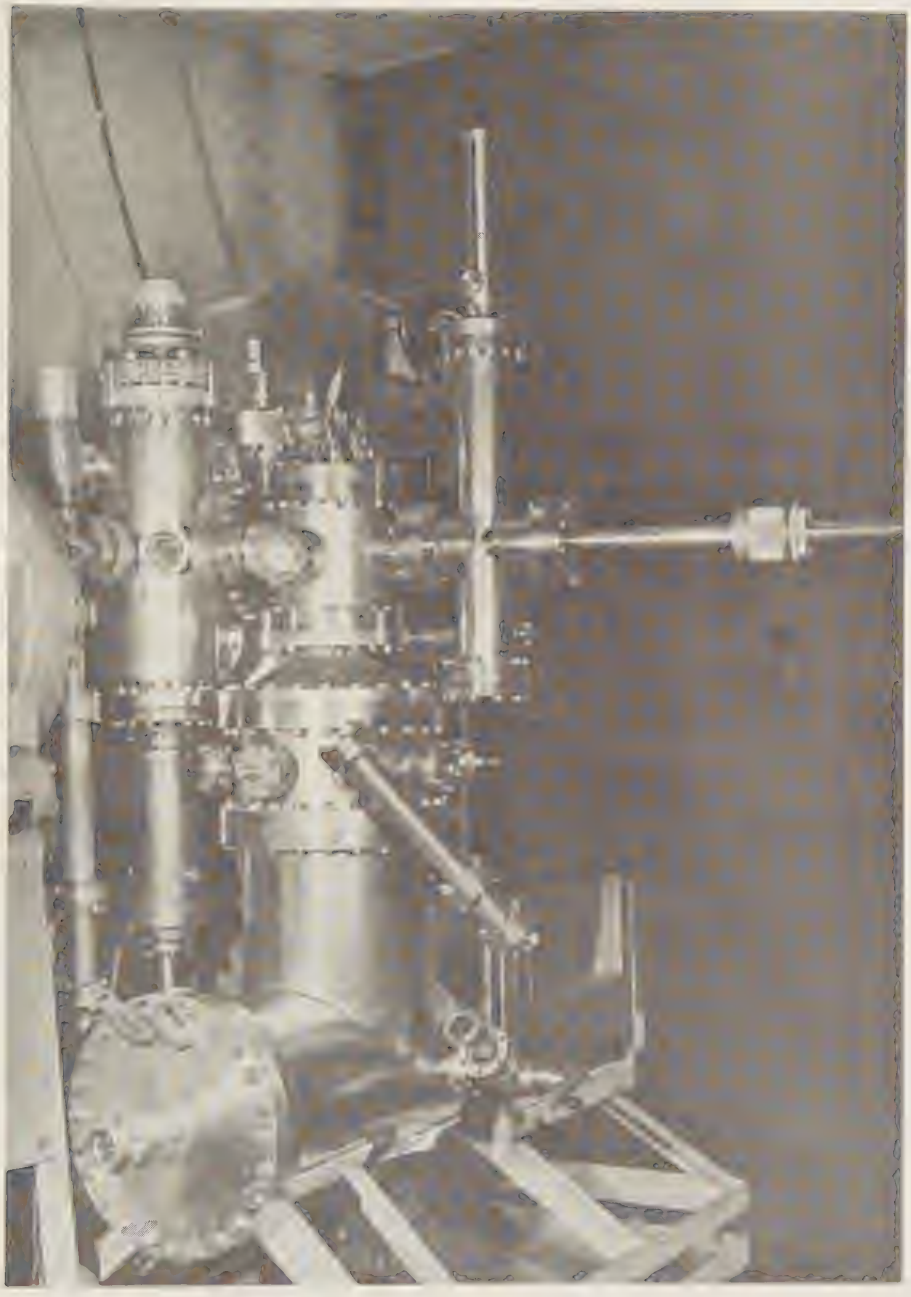


FIG_26

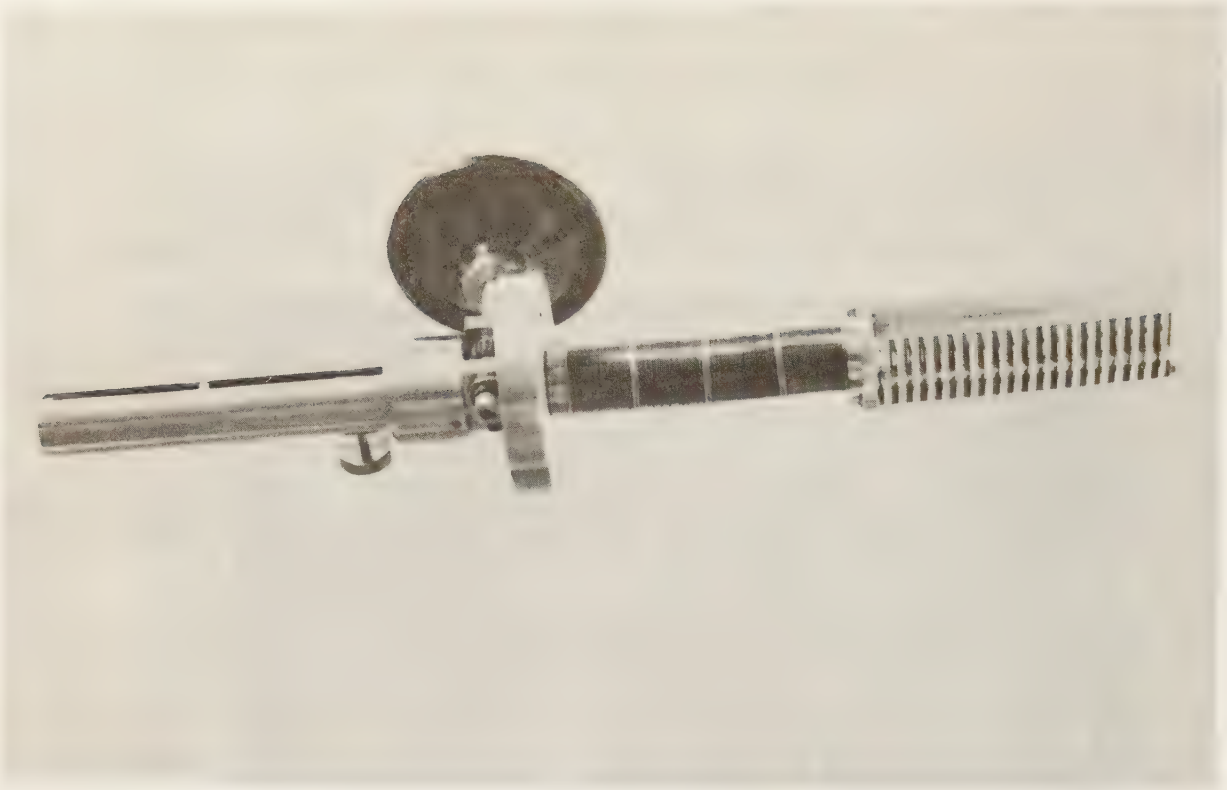


FIG_27

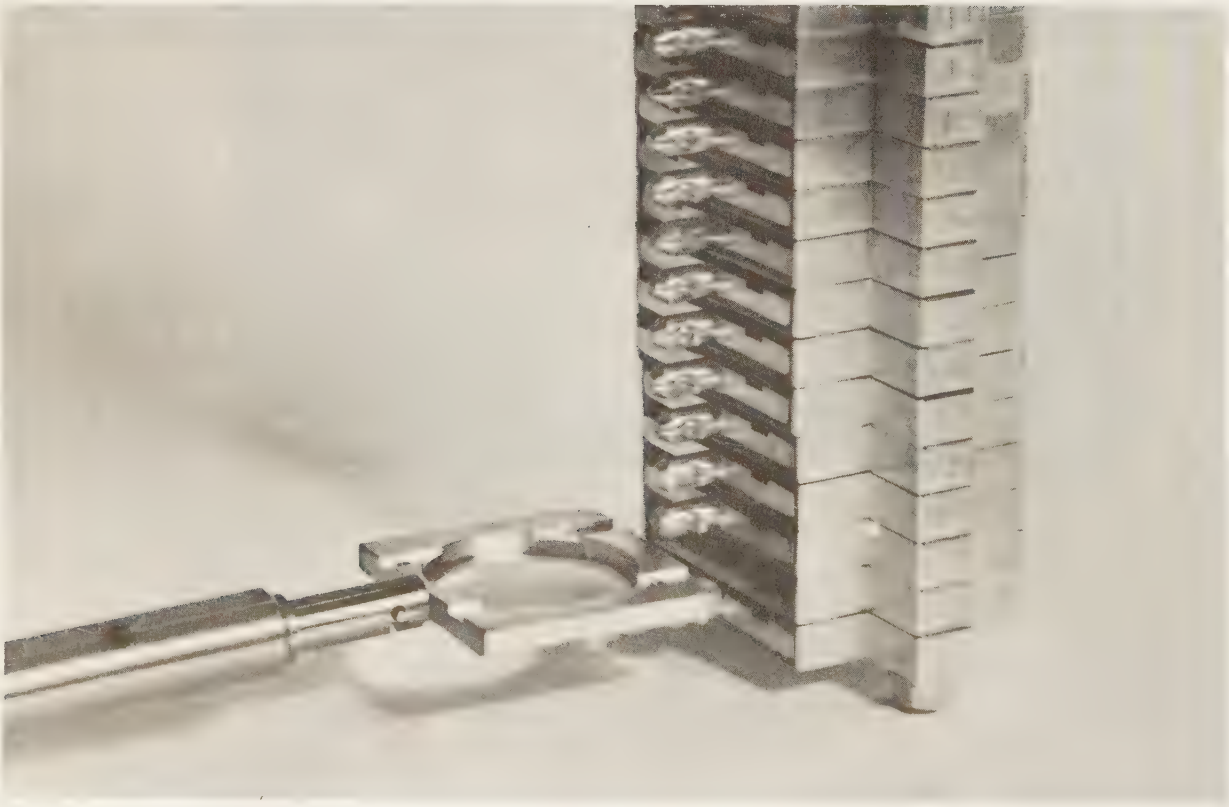


FIG_28

- Deuxième Partie -

II.2 - PERFORMANCES OBSERVEES.

II.2.1 - Tenue à la pression.

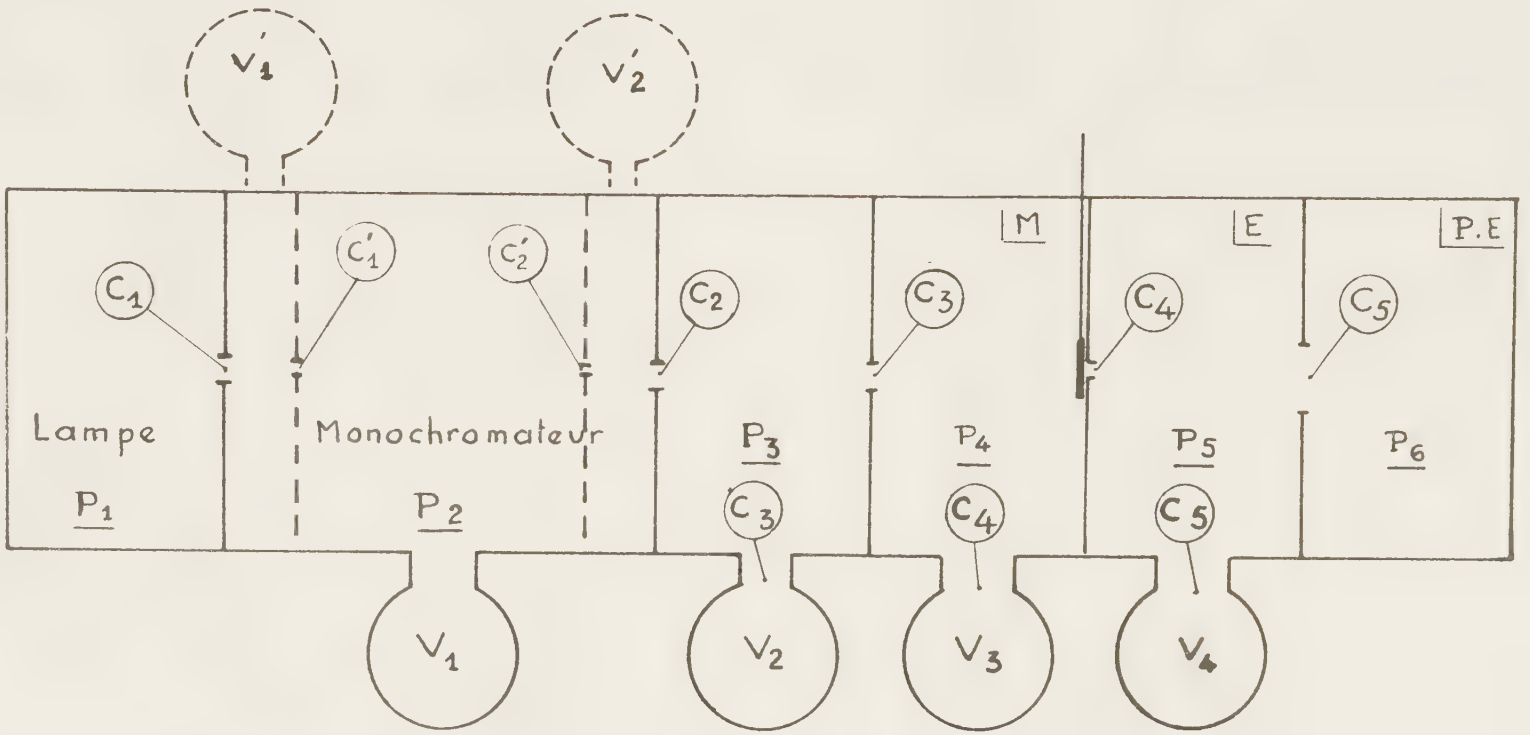
a) Pressions totales.

Le circuit vide est schématisé par la figure 29. Les calculs relatifs aux différentes conductances |50| sont développés dans l'annexe III. Les conductances C_1, C_2, C_3 sont des diaphragmes optiques réglables (fente d'entrée C_1, fente de sortie C_2, diaphragme C_3 (fig. 29)) laissant passer un faisceau lumineux suffisant pour les mesures optiques et limitant les échanges gazeux entre les différentes enceintes. C_4 et C_5 reliant les groupes de pompage à ultravide aux enceintes de mesures et d'évaporation ont au contraire les plus grandes dimensions possibles, compatibles avec la taille des chambres auxquelles elles sont reliées. V_1, V_2, V_3, V_4 sont les vitesses de pompage pour les pressions limites accessibles à l'aide des groupes utilisés dans les parties indiquées sur la figure 29. Nous avons résumé dans le tableau II-1, les caractéristiques du circuit vide et indiqué le régime de pressions existant dans les différentes enceintes au cours d'une expérience.

Les dispositifs de pompage utilisés sont suffisants pour maintenir une pression inférieure à 10^{-10} torr dans l'enceinte de mesure si l'on emploie la source utilisant un gaz sous pression réduite.

Par contre, si l'on veut utiliser une lampe à hydrogène sans fenêtre, des moyens de pompage supplémentaires doivent être adaptés.

Au laboratoire |51|, un monochromateur du même type que celui décrit ci-dessus a été construit, mais deux systèmes de pompage différentiel, comprenant les conductances C'_1 et C'_2 et les pompes de vitesses de pompage V'_1 et V'_2, ont été ajoutés conformément au schéma de la figure 29.



M : chambre de mesures

E : evaporateur

P.E : passeur d'échantillons

Fig. 29

TABLEAU II-1 - Caractéristiques du Circuit Vide

Conductances $L.s^{-1}$	Vitesses de pompage $L.s^{-1}$	Pressions limites en régime statique vannes fermées Torr	Pressions limites en régime dynamique vannes ouvertes Torr
$C_1 = 0,2$	$V_1 = 650$	$P_1 = 10^{-2}$	$P_1 = 10^{-2}$
$C_2 = 0,3$	$V_2 \simeq 25$	$P_2 = 1.10^{-6}$	$P_2 < 3.10^{-5}$
$C_3 = 0,5$	$V_3 \simeq 25.000$	$P_3 \simeq 2.10^{-9}$	$P_3 < 5.10^{-8}$
$C_4 = 1.000$	$V_4 = 25.000$	$P_4 < 5.10^{-11}$	$P_4 < 3.10^{-10}$
$C_5 = 3.000$		$P_5 < 5.10^{-11}$	$P_5 < 6.10^{-10}$

b) Pressions partielles |44|

L'analyseur de gaz nous a permis de relever la composition de l'atmosphère résiduelle pendant les différents stades de la préparation des dépôts. A titre d'exemple, nous avons indiqué sur la figure 30 la composition de l'atmosphère résiduelle et la pression totale avant l'évaporation et sur la figure 31, nous avons représenté l'évolution des pressions partielles durant une évaporation de fluorure de lithium. Nous n'avons pas effectué une étude systématique de l'influence de l'atmosphère résiduelle sur les propriétés optiques des dépôts, les pressions partielles relevées étant très faibles ($\simeq 10^{-13}$ torr) et la durée des expériences très courte devant le temps de formation de couches polluantes à de telles pressions.

Par contre, cet analyseur nous a été précieux :

- *Pour la recherche des fuites :*
  - évaluation du pic de l'azote et de l'oxygène pour les plus importantes,
  - recherche à l'hélium pour les plus faibles.

La sensibilité de cet appareil permet de mettre en évidence (sans procéder par accumulation) des fuites de débit inférieur à 1.10^{-10} atm.cm^3/s.

- *Pour la vérification de l'efficacité des étuvages préalables à toute expérience effectuée sous ultra-vide.* Nous verrons au chapitre III que le magnésium est très sensible à la présence de la vapeur d'eau.

- *Pour maintenir la vitesse de décomposition des fluorures pendant l'évaporation à un taux raisonnable.* En effet, une température trop élevée provoque la libération de fluor (masse 19), gaz particulièrement actif mais mal adsorbé par les systèmes de pompage, comme le montre le spectre tracé sur la figure 31 où l'on remarque que la masse 19 décroît plus lentement en fonction du temps que les autres constituants gazeux.

D'autre part, cet appareil pourrait aussi être utilisé à doser l'atmosphère résiduelle par admission d'un gaz quelconque et procéder ainsi à l'étude de l'action de ce gaz sous différentes pressions en fonc-

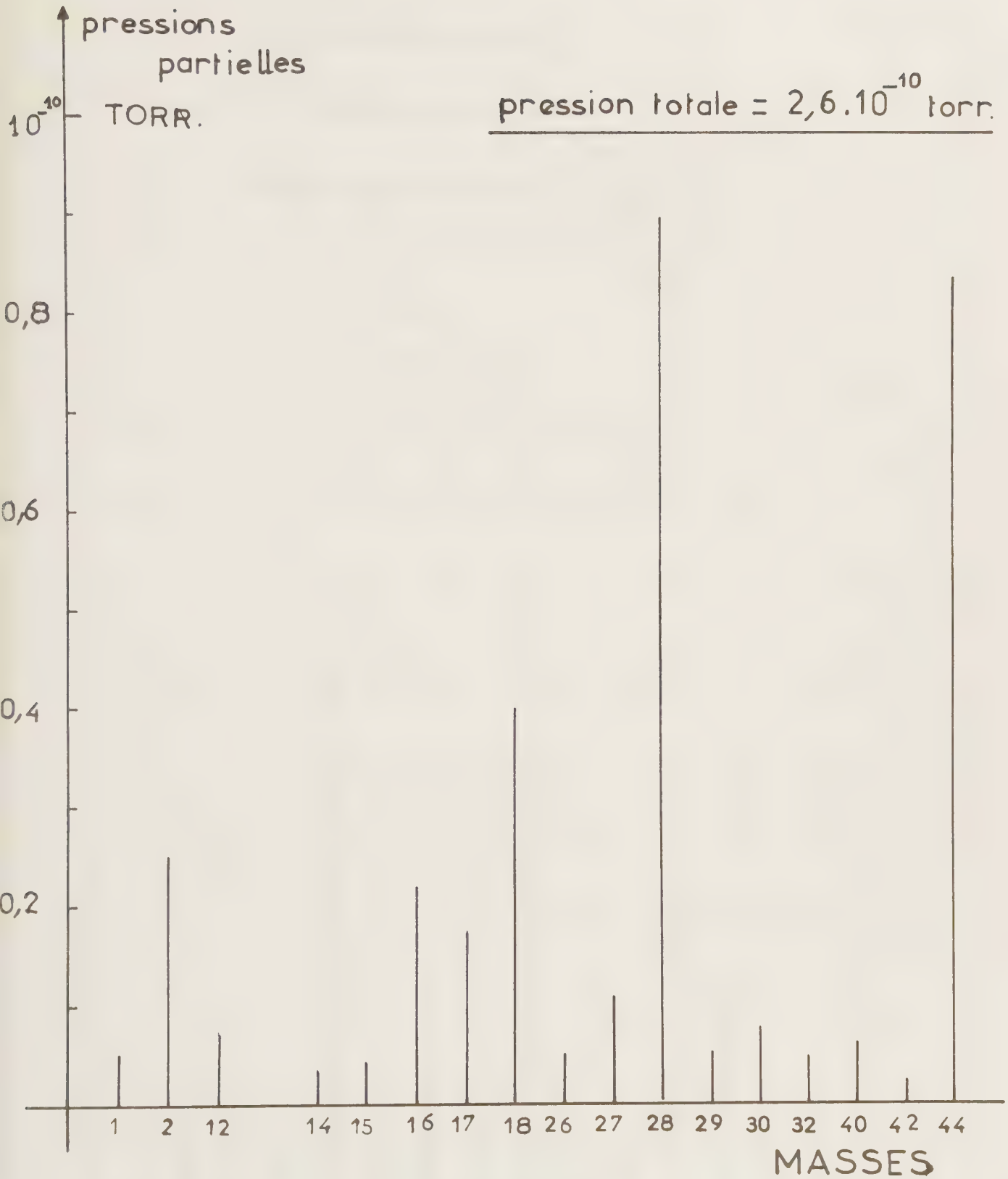

pressions
partielles
TORR.
10^{-10}
pression totale = $2,6.10^{-10}$ torr
0,8
0,6
0,4
0,2
1 2 12 14 15 16 17 18 26 27 28 29 30 32 40 42 44
MASSES

FIG-30

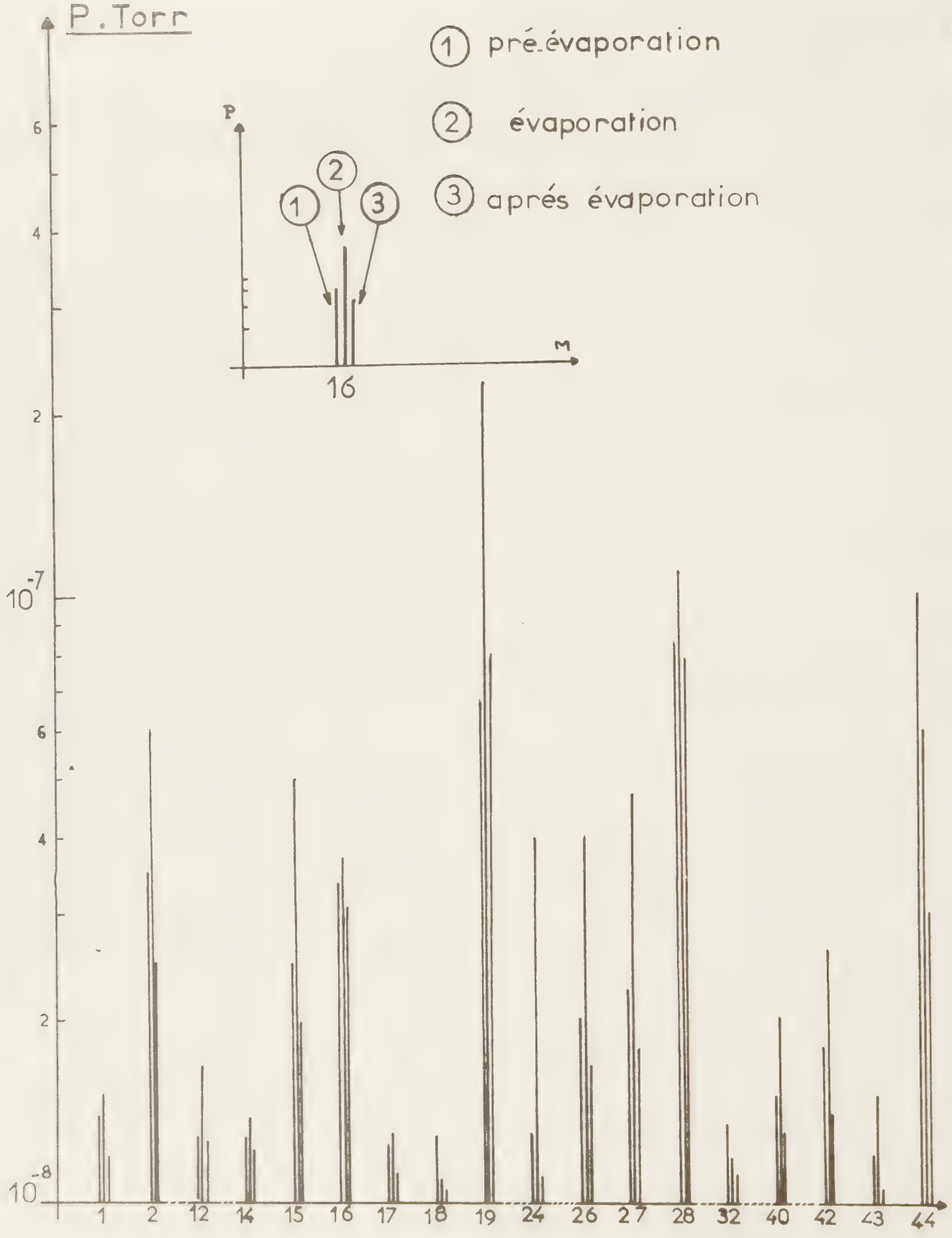

P. Torr
1 pré-évaporation
2 évaporation
3 aprés évaporation
P
M
1
2
3
16
6
4
2
10-7
6
4
2
10-8
1
2
12
14
15
16
17
18
19
24
26
27
28
32
40
42
43
44
MASSES

FIG. 31

tion de la durée de l'expérience.

II.2.2 - *Préparation des dépôts.*

Le tableau II-2 rassemble les différents procédés d'évaporation utilisés pour la formation des couches des 5 substances étudiées ainsi que les valeurs des vitesses d'évaporation et de la pression totale avant, pendant et après les évaporations.

II.2.3 - *Contrôle des dépôts.*

a) - *Contrôle d'épaisseur.*

Le dispositif à quartz piézo-électriques permet de mesurer la vitesse de formation de la couche et l'épaisseur totale de celle-ci.

Connaissant la densité du produit massif évaporé, nous pouvons évaluer l'épaisseur de la couche formée à l'aide la relation

$$\frac{\Delta f}{f} = - \frac{\Delta d}{d} = - \frac{\Delta m}{\rho . F . d}$$

où f *est la fréquence propre du quartz,* d *son épaisseur,* ρ *sa densité,* F *sa surface,* Δm *étant la masse de la couche déposée sur le quartz* |52|.

Nous pouvons également procéder à un étalonnage du quartz en relevant ses variations de fréquence pour différentes épaisseurs de dépôts, puis en mesurant celles-ci au microscope interférentiel |53|. C'est cette méthode que nous avons utilisée.

L'étalonnage du quartz a été déterminé pour chaque matériau dans une série d'expériences préalables. Pour des épaisseurs supérieures à 400 Å, la reproductibilité des mesures est satisfaisante. Pour les épaisseurs inférieures à 400 Å, la précision des mesures effectuées au microscope interférentiel devenant médiocre, nous avons procédé par extrapolation en admettant que les variations de fréquence du quartz étaient une fonction linéaire de l'épaisseur des dépôts comme l'indique la figure 32 qui représente la droite d'étalonnage pour le fluorure de magnésium.

Nous donnons dans le tableau II-3 la correspondance entre les

	Mode d'évaporation	Vitesse d'évaporation Å s^{-1}	Epaisseur des dépôts Å	Pression pendant l'évaporation TORR		Temps de retour à une pression < à 10^{-9} Torr
				Niveau des creusets	Niveau de l'échantillon	
Al	Spirale de W et cavalier d'Al	30 Å/s	900	1.10^{-8}	4.10^{-9}	< 30"
		600 Å/s	900	2.10^{-7}	3.10^{-8}	< 1'
Mg	Spirale de W et cylindre de Mg	10 Å/s	1200	2.10^{-8}	7.10^{-9}	< 30"
		400 Å/s	1200	2.10^{-7}	5.10^{-8}	< 1'
MgF_2	Creuset de Ta	20 Å/s	60	1.10^{-8}	$< 10^{-8}$	< 3'
	Poudre de MgF_2	100 Å/s	600	10^{-7}	5.10^{-8}	< 5'
LiF	Creuset de Ta	20 Å/s	100	$< 10^{-8}$	$< 1.10^{-9}$	< 1'
	Cristaux LiF	100 Å/s	500		$\simeq 5.10^{-9}$	< 2'
CaF_2	Creuset de W et Ta	10 Å/s	20	1.10^{-8}	5.10^{-9}	< 2'
	Poudre de CaF_2	150 Å/s	800	6.10^{-8}	2.10^{-8}	< 5'

TABLEAU II-2 - Procédés d'évaporation utilisés

TABLEAU II-3

	Epaisseur Å	ΔH : Hertz	$\frac{\Delta e}{e}$ %
Al	500	50 ± 10	20 %
	2000	250 ± 10	4 %
Mg	700	60 ± 10	15 %
	2500	280 ± 10	3 %
MgF_2	60	30 ± 10	30 %
	1000	500 ± 10	2 %
LiF	50	30 ± 10	30 %
	1000	600 ± 10	15 %
CaF_2	60	20 ± 10	50 %
	2000	650 ± 10	~ 1,5 %

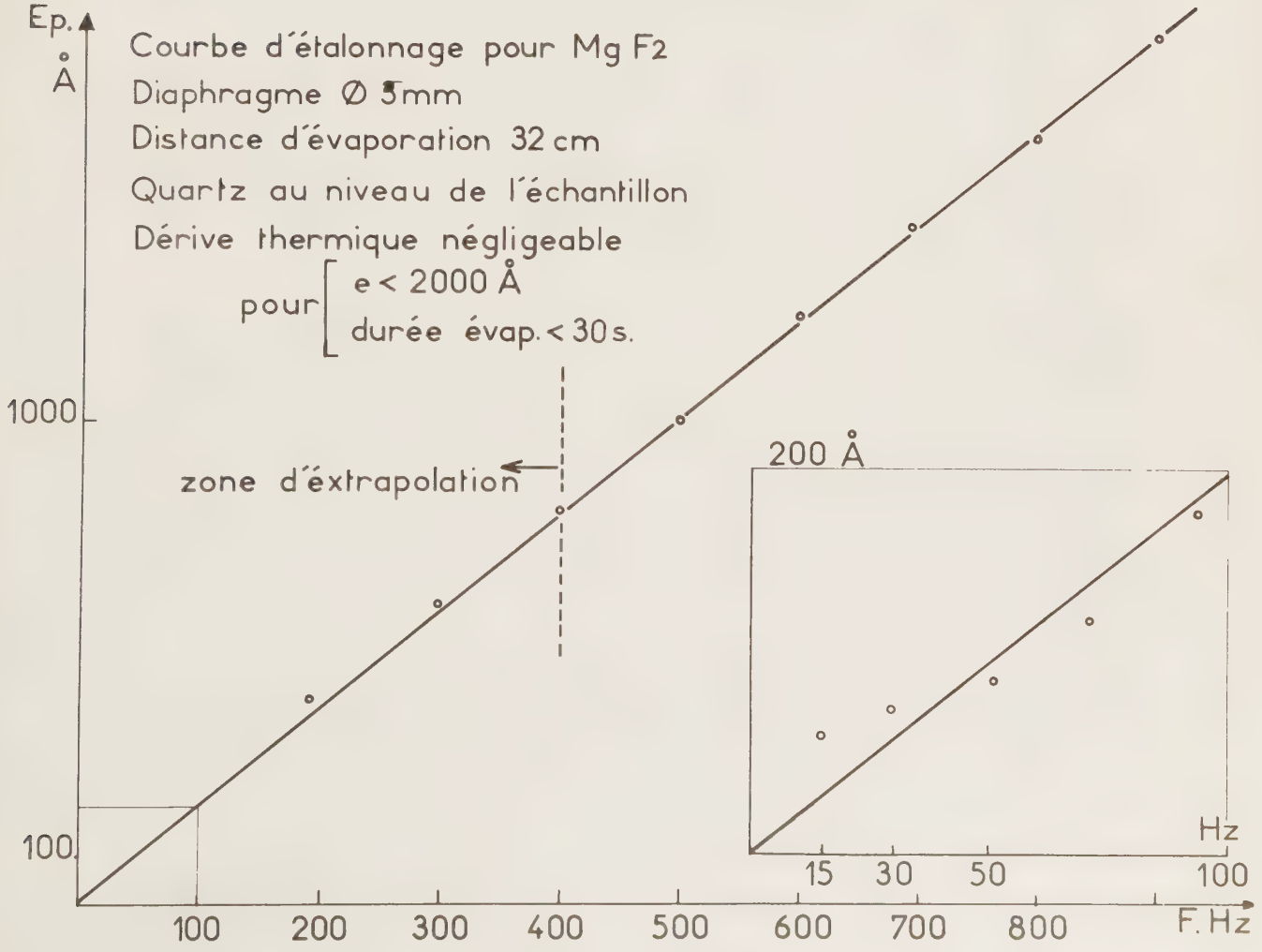


Fig. 32

variations de fréquence (en hertz) du quartz et les épaisseurs des dépôts (en Å) pour l'aluminium, le magnésium et les fluorures de magnésium, calcium et lithium. L'imprécision de la mesure est également indiquée pour les épaisseurs extrêmes des couches étudiées.

Pour améliorer le contraste des franges d'interférences fournies par la lumière réfléchie sur les deux surfaces qui forment la marche d'épaisseur inconnue, nous avons recouvert les échantillons d'une couche mince d'aluminium beaucoup plus réfléchissante que le pyrex qui sert de support et que les fluorures déposés.

b) - Examen de l'aspect superficiel des dépôts.

- *après remise à l'air.* Afin d'évaluer l'importance des aspérités superficielles des dépôts examinés, nous avons observé au microscope électronique le profil des couches minces évaporées. Pour cela, nous avons utilisé une méthode légèrement différente de celle employée par BOUSQUET |54|. Durant la préparation des échantillons, une partie du dépôt effectué est recueillie sur une très mince plaquette d'or (épaisseur 20 µ). Après avoir plié la plaque sur elle-même, nous observons au microscope électronique la courbure portant une partie du dépôt. Un faible rayon de courbure limite l'épaisseur sur laquelle sont observées les aspérités et la profondeur de champ du microscope permet d'obtenir une image nette de 3 ou 4 plans d'aspérités successifs. La figure 33 représente le profil d'une couche mince de fluorure de calcium sur or. La structure de cette couche se présente sous forme de stalagmites plus ou moins hautes mais très régulièrement espacées, les profondeurs des vallées qui séparent les cristallites dépendant de l'épaisseur du dépôt. Pour éviter un recuit et un effondrement des aspérités sous l'action du faisceau d'électrons, d'une part l'échantillon doit être refroidi à l'air liquide, d'autre part, lors de la mise au point les temps d'exposition doivent être réduits au minimum. La précision de ce procédé et ses possibilités sont indiquées par l'échelle de la figure 33.

Nous avons également utilisé des "cheveux" de pyrex, d'or et de cuivre comme supports. Les résultats obtenus sont identiques comme

le montrent les figures 34 et 35 qui représentent le profil de couches minces d'aluminium déposées sur plaquette d'or (fig. 35) et sur un cheveu de pyrex (fig. 34). Cependant les dépôts de fluorure sur pyrex sont inobservables au microscope électronique en raison de la charge d'espace qui se forme autour de l'échantillon non conducteur.

II.2.4 - Mesures optiques.

a) Dispositif muni de fenêtres de fluorure de lithium.

Nous avons vu que dans ce dispositif la mesure du pouvoir réflecteur était effectuée par comparaison directe entre l'intensité lumineuse réfléchie par la substance étudiée I_{θ_1} et l'intensité lumineuse réfléchie par une couche étalon I_e.

Si R_e est la valeur du facteur de réflexion de l'étalon et ΔR_e l'incertitude avec laquelle est déterminée R_e, l'imprécision ΔR_{θ_1} sur la mesure $R_{(\theta_1)}$ du pouvoir réflecteur de la couche étudiée dépend comme l'indique la relation

$$R_{\theta_1} + \Delta R_{\theta_1} = \frac{I_{\theta_1}}{I_e} (R_e \pm \Delta R_e)$$

de la valeur du rapport $\alpha = \frac{I_{\theta_1}}{I_e}$

La détermination de R_e est effectuée dans un réflectomètre annexe [37]. ΔR_e est égal à 0,5 % de la valeur mesurée pour R_e. ΔR_{θ_1} étant d'autant plus faible que α est petit il est souhaitable d'utiliser un étalon de pouvoir réflecteur aussi élevé que possible.

Nous avons utilisé comme étalon :

- soit des couches minces d'or qui sont très stables, mais qui par contre, présentent un faible pouvoir réflecteur, ce qui conduit pour les substances étudiées (Al, Mg) à $\alpha \simeq 5$, d'où une erreur ΔR_{θ_1} de $\pm$ 2,5 % environ,

- soit des couches minces d'aluminium protégées par une couche mince de fluorure de magnésium permettant de réduire α à une valeur comprise entre 1 et 1,1 environ.

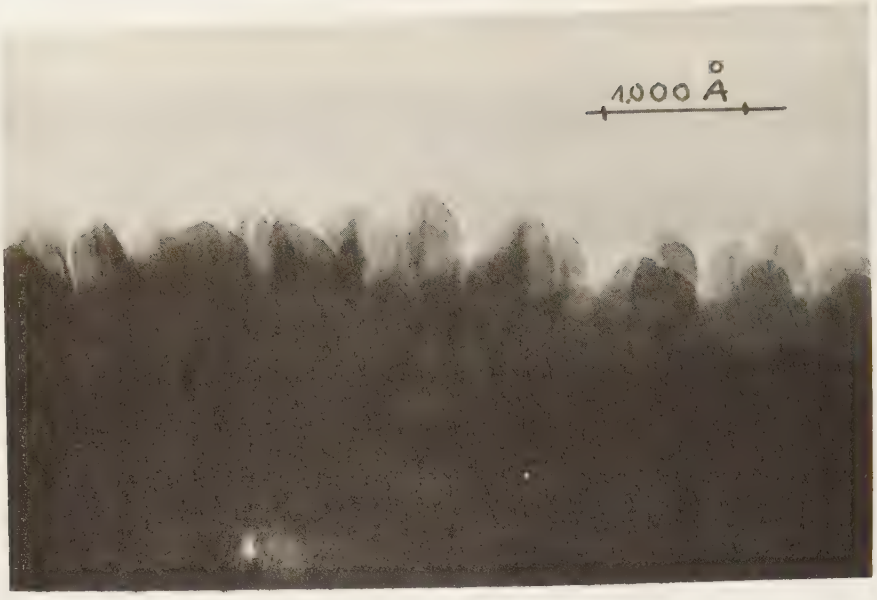


FIG_33 CaF_2 non refroidi

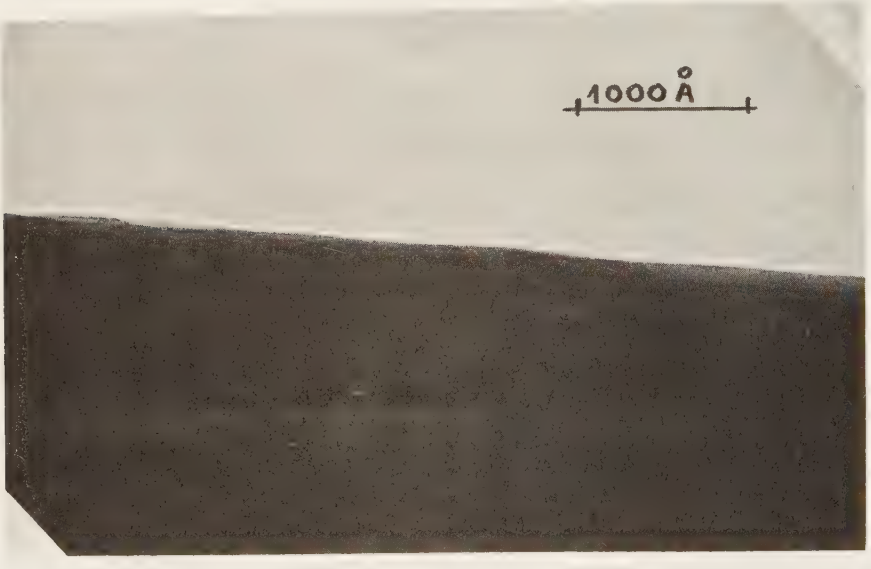


FIG_34 Al sur fil pyrex

FIG_35 Al sur plaquette d'or

Toutefois, dans ce dernier cas, de grandes précautions doivent être prises car la couche diélectrique est très sensible à l'étuvage et aux décharges électriques créées pendant l'amorçage des pompes ioniques. Après chaque expérience, nous avons dû vérifier la stabilité de l'étalon utilisé en procédant, dans une enceinte annexe |37|, à la réévaluation de son pouvoir réflecteur. La précision des mesures est alors analogue à celle avec laquelle est déterminé le pouvoir réflecteur de l'étalon, soit ± 0,5 %.

b) Dispositif sans fenêtre.

L'évaluation du pouvoir réflecteur $R(\theta_1)$ est effectuée, longueur d'onde par longueur d'onde (de 20 en 20 Å environ dans le domaine spectral exploré), à partir de la mesure de l'intensité de la lumière incidente (I_o) (correspondant à l'intensité maximum fournie par le détecteur lorsqu'on déplace celui-ci devant la fente de sortie du monochromateur) et de l'intensité réfléchie I_{θ_1} (correspondant également à la réponse maximum du détecteur, la position de celui-ci étant repérée par rapport à la position I_o à l'aide d'un index solidaire du détecteur). Les angles d'incidence peuvent varier entre 13 et 75 degrés (ces angles seront notés θ_1 ou θ_1' suivant que le déplacement du détecteur est effectué dans le sens positif ou négatif à partir de la position I_o, figure 36). A l'aide du dispositif de mesures décrit plus haut, la précision des résultats dépend essentiellement de trois facteurs.

1°) la source.

Les variations d'intensité peuvent être corrigées par les indications fournies par le photomultiplicateur témoin (T), figure 36. Ceci suppose que la réponse des deux détecteurs (témoin et mesure) reste toujours proportionnelle à l'excitation reçue. En évaluant le rapport entre les intensités I_θ et I_o, nous avons vérifié qu'il en était ainsi (dans les limites de la précision permise par le dispositif d'enregistrement) lorsque l'intensité variait d'un facteur 1 à 80 (les variations d'intensité étant obtenues par ouverture ou fermeture des fentes du monochromateur, ou en changeant le régime de fonctionnement de la source).

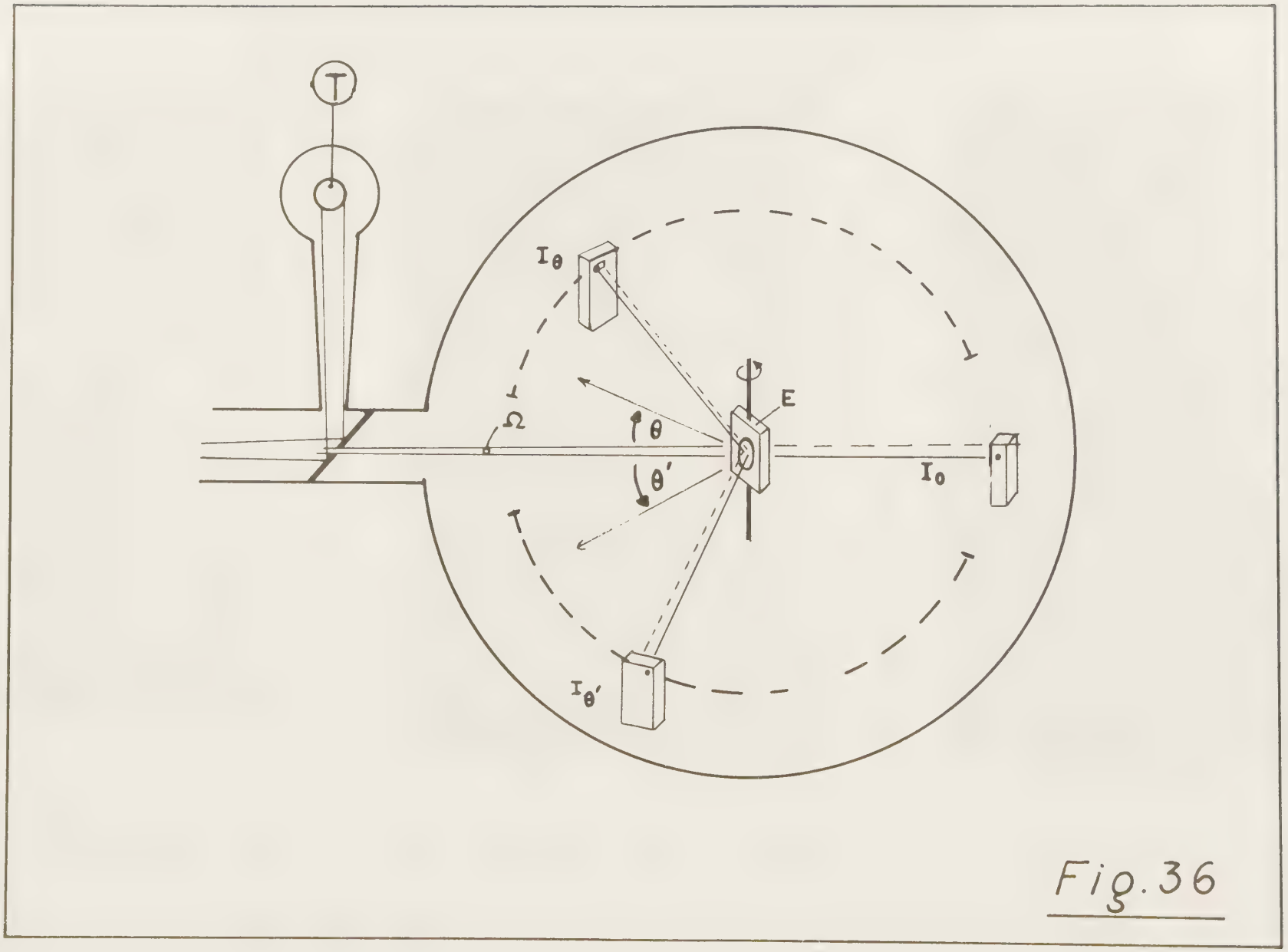


Fig. 36

2°) *le détecteur*.

Il faut considérer :

- *la variation du champ magnétique local* due aux aimants des pompes ioniques ou de la lampe Penning employés. Le photomultiplicateur M 306, bien que "plongé" dans un champ magnétique de 5 à 600 gauss, reste cependant sensible à une variation du champ magnétique extérieur |45| ; à l'aide d'un blindage en mu-métal (épaisseur 3 mm), nous avons pu réduire ces variations à ± 1 gauss environ dans le plan de rotation du photomultiplicateur. La protection magnétique est ainsi suffisante pour qu'un aimant permanent de 100 gauss ne provoque aucune variation du signal lorsqu'on le déplace au voisinage (5 cm) du détecteur.

- *l'erreur sur l'évaluation de l'angle d'incidence*. Nous avons représenté sur la figure 37 les valeurs obtenues en mesurant le pouvoir réflecteur d'une couche de magnésium pour la longueur d'onde 604 Å pour des angles d'incidence variant de 2,5 en 2,5 degrés entre 13 et 75 degrés ; la courbe (a) correspond aux angles θ, la courbe (b) aux angles θ'. Nous observons un décalage, sensible, entre les abscisses. L'aspect analogue de ces courbes et le fait que les maxima M et M' d'une part et les minima m et m' d'autre part, correspondent à des mêmes valeurs absolues (dans le domaine d'erreur permis ΔR), indiquent que les valeurs des angles d'incidence θ et θ' lues sur le vernier du mouvement ne sont pas correctes.

Nous obtiendrons tout de même les valeurs très approchées du pouvoir réflecteur en fonction de l'angle d'incidence en prenant la courbe (c), moyenne des deux précédentes.

Les causes du déplacement observé sont liées aux imperfections de l'appareillage et peuvent être expliquées :

α - *par le mode de fixation* des accessoires sur l'enceinte de mesures (joints métalliques et boulons de serrage, nécessitant un jeu indispensable au montage) causant un léger décalage entre les axes O et O' de rotation du détecteur et du porte-échantillons et la direction (L) de propagation du faisceau (fig. 38 (a)).

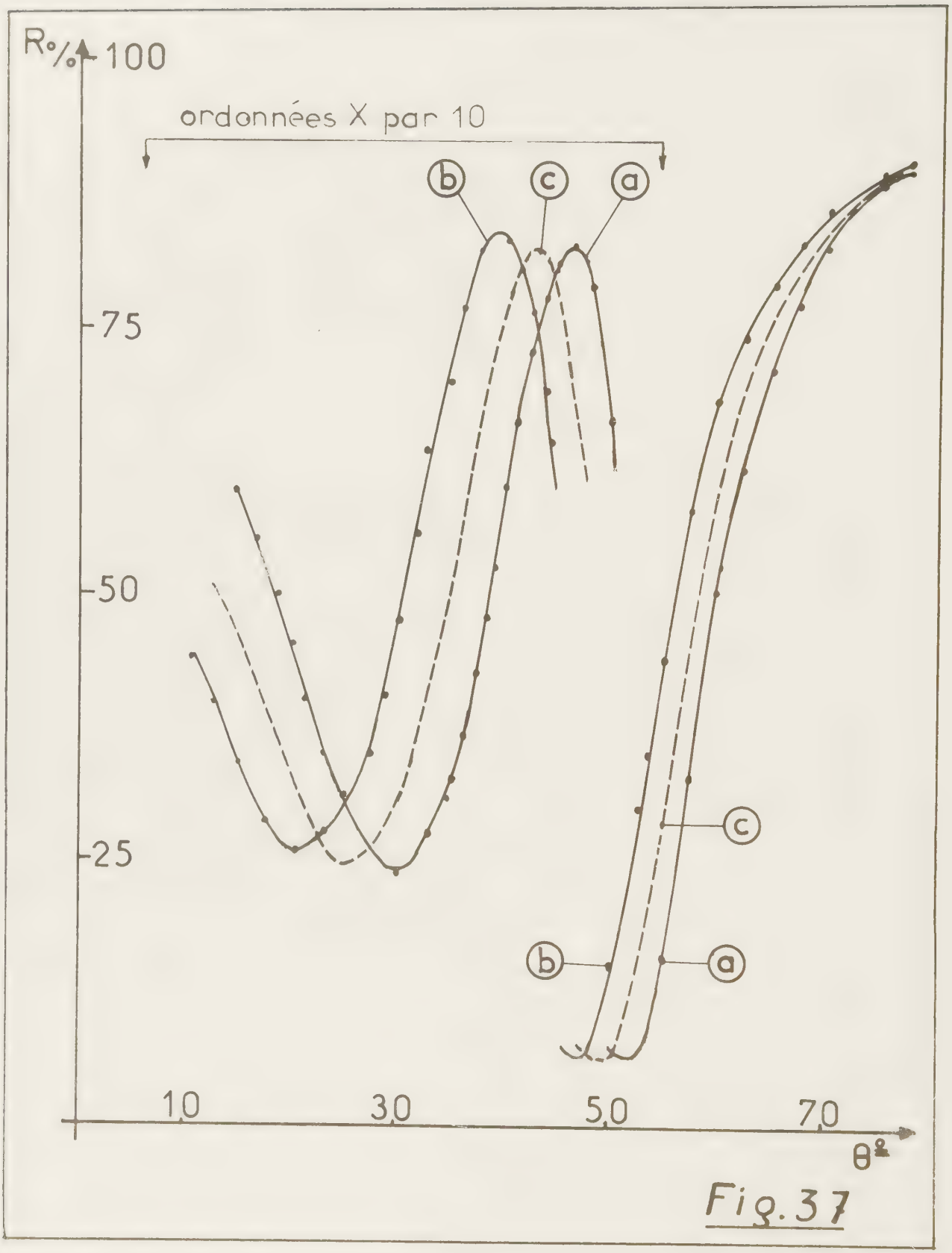


Fig. 37

β - *par le système de focalisation de la lumière*. En effet, lorsque le domaine spectral compris entre 500 et 3000 Å est parcouru, la convergence des rayons lumineux sur F_2 est assurée en partie par la translation A.A' du réseau (Fig. 38(b)). La direction principale de la lumière passe ainsi sur le détecteur de I_o en I'_o (4 mm à 30 cm de F_2) mais le détecteur (D) voit un décalage angulaire beaucoup plus important. Sur la figure 38a, nous avons indiqué (à l'échelle 1) le comportement des rayons réfléchis et évalué graphiquement le décalage observé entre la position théorique des détecteurs, pour une incidence $\theta = \theta' = 60°$, et les angles α et α' relevés sur le repère lié au détecteur. Sur la figure 39, nous avons au contraire évalué les angles réels d'incidence pour obtenir la réponse maximum du détecteur fixé à $\alpha = I_o OD = 90°$ et pour la valeur symétrique $\alpha' = I_o OD' = 90°$. L'écart maximum entre les angles d'incidence (relevé après réglage) atteint dans les cas les plus défavorables 4° environ. Le déplacement n'est pas rigoureusement linéaire mais le procédé d'interpolation adopté (courbe c) permet de réduire l'erreur angulaire à une valeur inférieure à 0,5° (valeur qui représente l'erreur avec laquelle la position du détecteur peut être appréciée).

γ - *par l'inversion de l'image et l'inhomogénéité de la photocathode* [55]. Après réflexion de la lumière sur l'échantillon (E) (Fig. 36), l'image de la source lumineuse sur la photocathode est inversée par rapport à l'image reçue directement en I_o, la réponse du détecteur pouvant être affectée soit par l'inhomogénéité de la photocathode, soit par une répartition inhomogène de l'intensité lumineuse dans l'angle solide Ω sous lequel le détecteur voit la source. Nous avons enregistré l'intensité recueillie par le détecteur pour des positions angulaires variables autour des positions moyennes I_o d'une part (courbe a), et I_θ d'autre part (courbe b), (Fig. 40). (Dans ce dernier cas, l'angle θ étant choisi, l'échantillon (E) est fixé après obtention de l'intensité maximum I_θ sur le détecteur, puis celui-ci est déplacé autour de sa position I_θ). La courbe (c) est la courbe homothétique de la courbe (a) en tenant compte de la valeur du pouvoir réflecteur de l'échantillon. La dissymétrie des courbes (a) et (b) incite à penser que le rendement de la photocathode n'est pas identique de part et d'autre de l'axe de symétrie matérialisé par le faisceau lumineux et que cette dissymétrie (due vraisemblablement à la position du détecteur, comme nous l'indiquons sur la figure 38 (a)) n'affecte

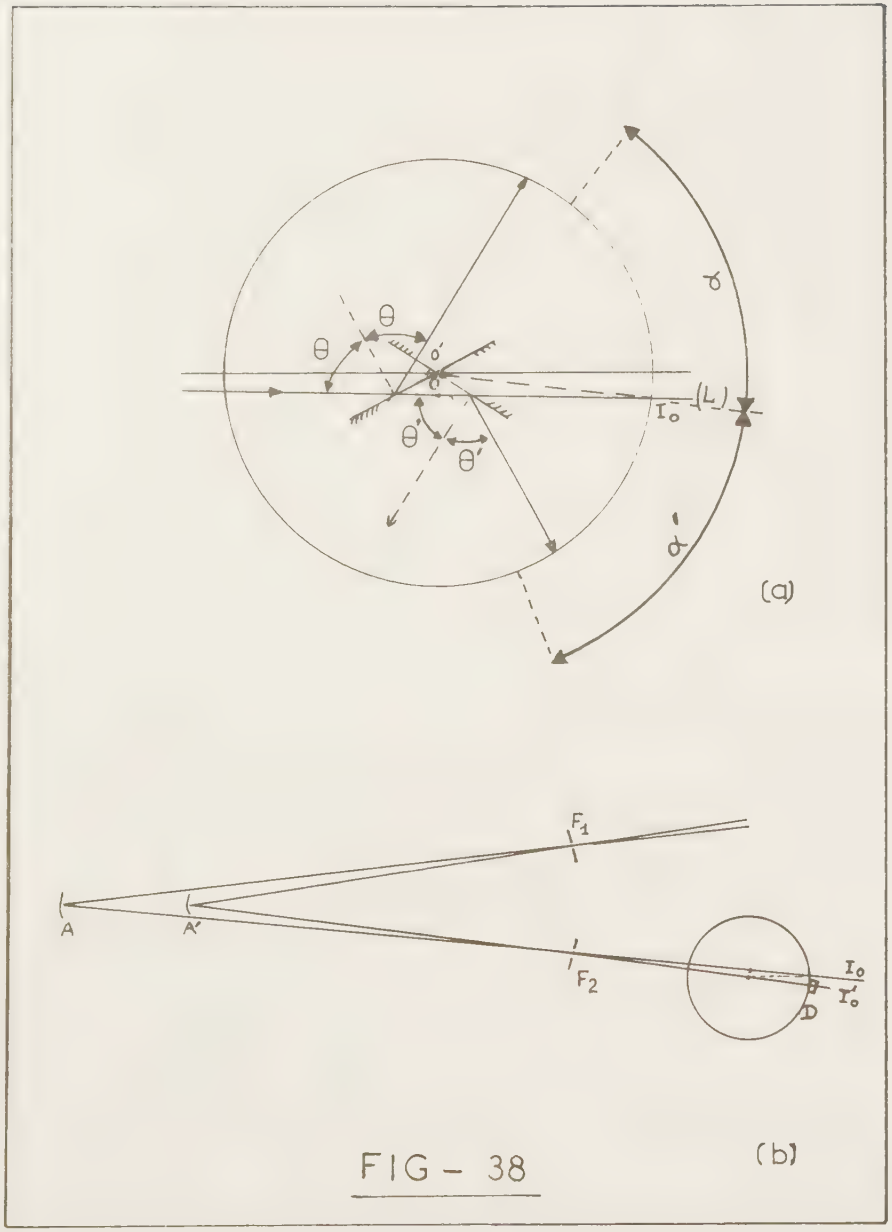


FIG - 38

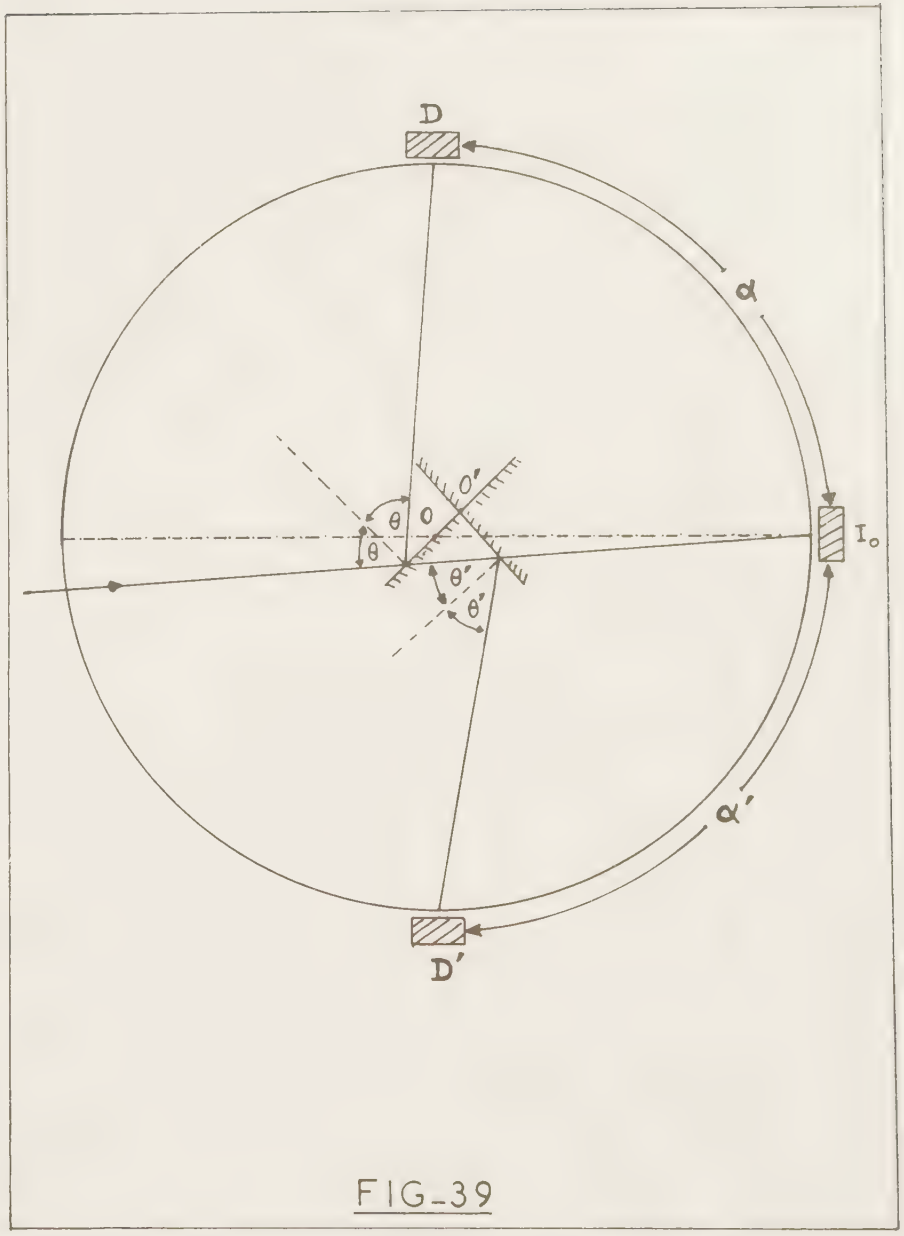


FIG-39

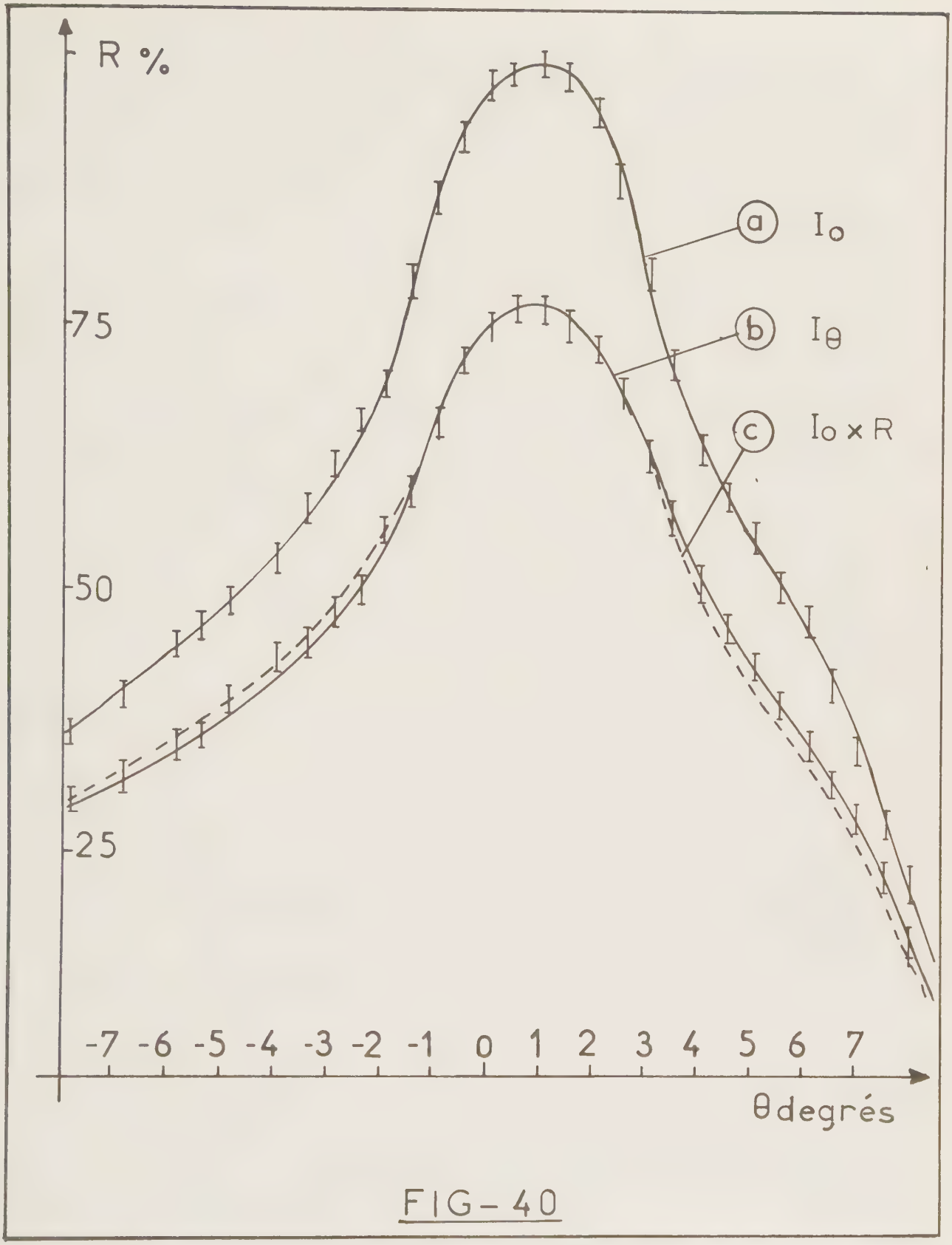


FIG-40

pas le résultat de la mesure ; en effet, la densité du faisceau lumineux est suffisamment homogène dans l'angle solide Ω puisque l'inversion de l'image ne provoque aucun changement dans la répartition des intensités lumineuses vues, dans les deux positions, par la photocathode (au facteur de réflexion près). Le rendement du détecteur est donc comparable pour les positions quelconques I_o, I_θ ou $I_{\theta'}$.

3°) le système d'enregistrement.

La précision des mesures dépend également de l'électronique suivant le détecteur. L'appareil de mesures utilisé (Keithley 416 A) permet d'évaluer des intensités comprises entre 10^{-4} et 10^{-12} ampère mais les parasites hertziens, les retours par les masses et les fluctuations des décharges électriques dans la source de lumière ainsi que le bruit de fond du détecteur font que l'importance relative de ces défauts limite la précision de la mesure à ± 0,5 % pleine échelle (signal de hauteur 220 mm environ pour l'enregistrement) pour les gammes de mesures d'intensités supérieures à 10^{-9} ampère. Pour les gammes de mesures d'intensités inférieures, nous avons noté une précision de 2 % à 10^{-9} ampère, 4 à 5 % à 5.10^{-11} ampère.

Améliorations de la réponse du détecteur du côté des grandes longueurs d'onde.

Le flux de lumière n'étant pas toujours suffisant pour permettre l'utilisation de l'électromètre dans ces gammes de travail, nous avons augmenté le rendement du détecteur par l'emploi de photocathodes présentant le meilleur rendement quantique possible suivant le domaine spectral d'étude. Nous avons utilisé :

a) une photocathode en tungstène (livrée par le constructeur du détecteur) pour la zone 500-1200 Å ;

b) une photocathode en iodure de césium |56| (couche mince de 1000 Å d'épaisseur évaporée sur la cathode en tungstène) pour la zone 900-1700 Å.

c) une photocathode en tellurure de césium (préparée comme la précédente) pour la zone 1500-2200 Å |56| |32|.

La figure 41 représente le rendement quantique relatif aux trois photocathodes précédentes en prenant pour unité arbitraire le signal fourni par la photocathode en tungstène massif pour la raie (1216 Å) Lyman α de l'hydrogène |57|.

Sur la figure 42 nous avons reporté les intensités recueillies en fonction de λ, par le détecteur, celui-ci étant muni, soit d'une photocathode en tungstène (A), soit d'une photocathode en iodure de césium (B).

L'ensemble du dispositif de mesures comprenant le monochromateur, la source U.V., l'appareillage ultra-vide et le dispositif d'enregistrement, est représenté par la figure 43.

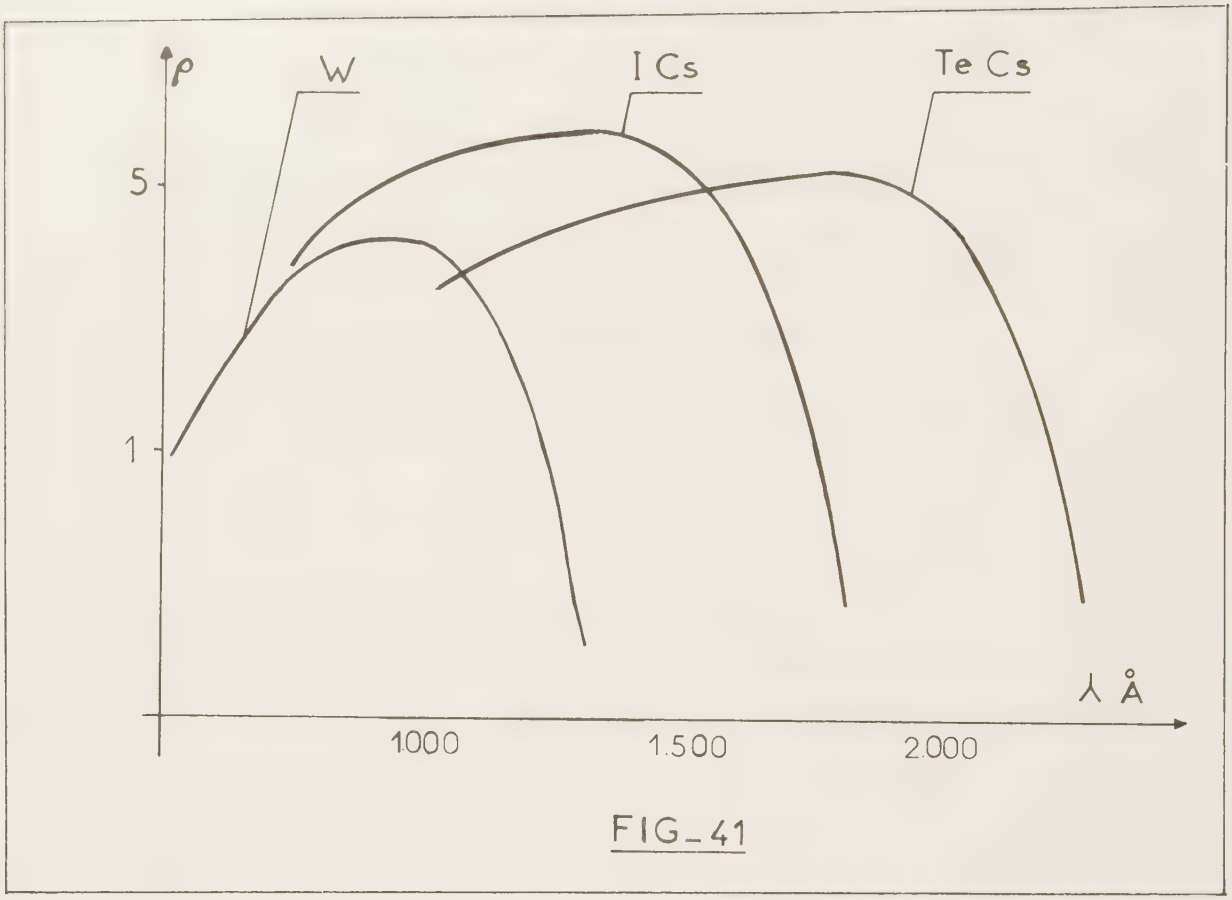

ρ
W
I Cs
Te Cs
5
1
λ Å
1000
1.500
2.000

FIG_41

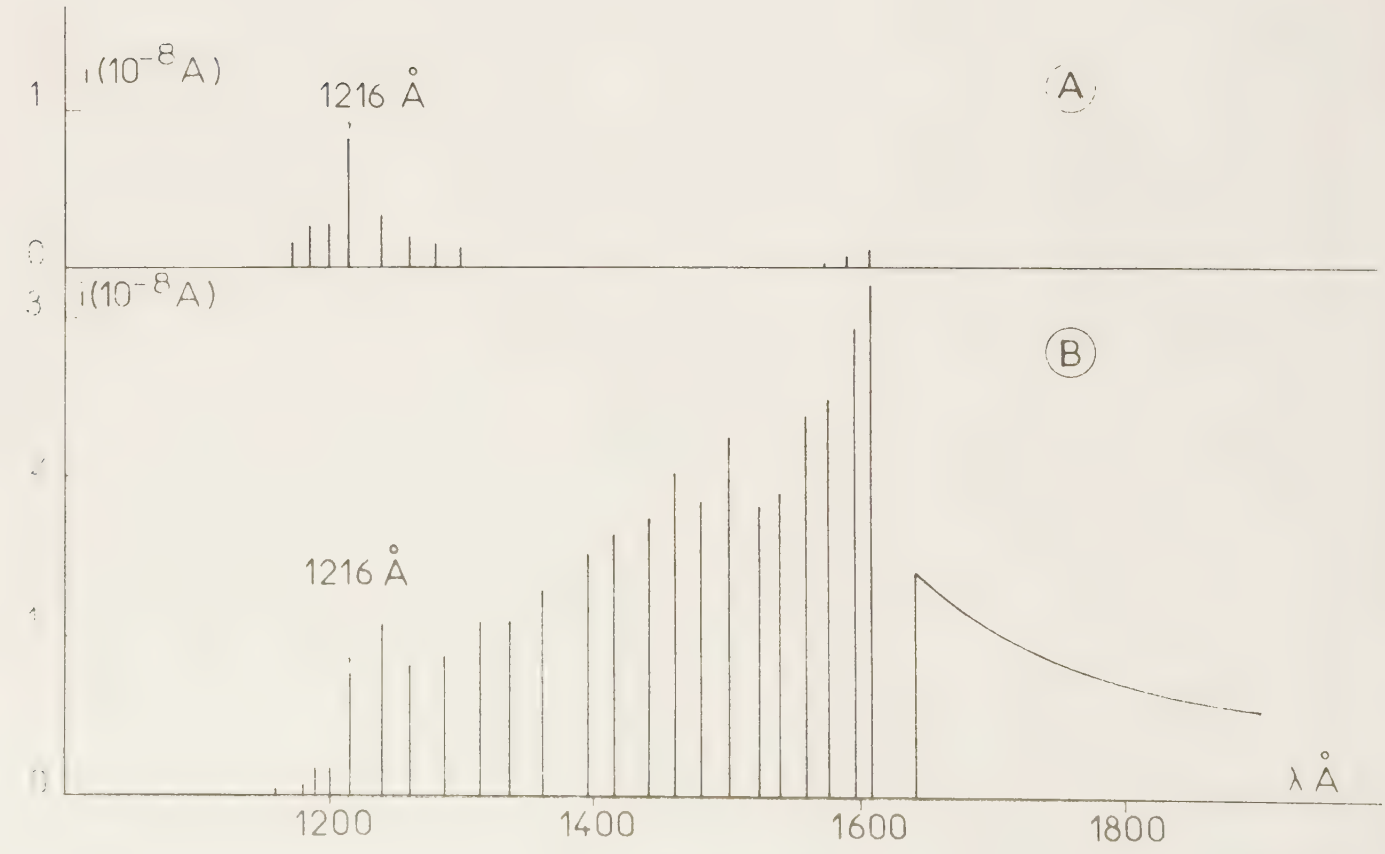

i(10⁻⁸A)
1216 Å
A
i(10⁻⁸A)
B
1216 Å
λ Å
1200
1400
1600
1800

FIG_42

FIG _ 43

Chapitre III

RESULTATS ET INTERPRETATIONS

GENERALITES.

Le béryllium, l'aluminium et le magnésium faisant partie des métaux, qui suivent de près la théorie de l'électron libre, doivent avoir une longueur d'onde critique λ_c *(Annexe IV)*, voisine de 630 Å pour Be, 830 Å pour Al, 1200 Å pour Mg |21|.

Les valeurs du pouvoir réflecteur d'échantillons plans et "propres" de Be, Al et Mg, calculées à partir de la théorie de DRUDE |58|59| (en supposant que le gaz d'électrons a un temps de collision τ de 1.10^{-15} seconde), sont représentées sur la figure 44 (courbes en trait plein). Elles montrent que ces trois métaux sont susceptibles d'être utilisés dans l'ultra-violet lointain pour le revêtement d'appareils d'optique (miroirs, réseaux, polariseurs) ou comme filtres sous forme de couches très minces. Nous avons également reproduit sur la même figure les valeurs du pouvoir réflecteur de ces métaux, mesurées par différents chercheurs |21| |60| |61| avant 1968 (courbes en traits pointillés). On peut voir sur cette figure que seuls l'aluminium et le magnésium présentent des qualités voisines de celles que prévoit la théorie |62|.

L'étude que nous avons effectuée sur les propriétés optiques de couches minces de béryllium produites par évaporation à partir de creusets en tantale, ne nous a pas permis, bien que réalisée sous ultra-vide, d'obtenir des dépôts de qualités supérieures à celles mesurées par TOOTS, pour des couches évaporées et étudiées sous une pression de 3.10^{-7} torr |60|.

Nous pensons que :

- les conditions de préparations actuelles ne sont pas optima pour le Be et qu'en particulier, l'évaporation par effet Joule à partir de nacelles de métaux réfractaires provoque la formation d'un alliage

entre le métal du creuset et le béryllium,

- les vitesses d'évaporation permises par ce procédé ne sont pas suffisamment élevées pour la formation de bons dépôts.

En attendant de pouvoir tester d'autres procédés d'évaporation (lévitation et chauffage H.F. par exemple), notre étude porte essentiellement sur les propriétés de couches minces d'aluminium et de magnésium.

Nous donnerons ci-dessous (§ *III.1*) les résultats obtenus pour des couches minces réalisées dans les meilleures conditions de préparation possibles à l'aide de notre appareillage. En utilisant les théories existantes, nous relierons les valeurs expérimentales aux paramètres habituellement employés pour caractériser le comportement de ces métaux (constantes optiques - constante diélectrique ...).

Dans le paragraphe (*III.2*), nous étudierons les effets dus à la rugosité des dépôts.

Enfin, dans le dernier paragraphe (*III.3*), nous examinerons l'influence du vieillissement des dépôts par pollution superficielle, ainsi que les propriétés de surfaces réfléchissantes protégées par évaporation de couches transparentes stables.

III.1 - ETUDE D'ECHANTILLONS "PLANS ET PROPRES".

III.1.1 - Pouvoir réflecteur.

Dans le tableau III-1, nous indiquons les domaines de variations des paramètres d'évaporation permettant d'obtenir des couches d'Al et de Mg présentant un haut pouvoir réflecteur. En respectant ces conditions de préparation, nous avons pu produire des couches minces de facteurs de réflexion identiques d'un échantillon à l'autre (compte tenu de la marge d'erreur permise par notre dispositif de mesures, soit ± 0,5 %).

Les possibilités de notre appareillage et les méthodes d'évaluation des constantes optiques nous ont conduit à partager le domaine spectral de mesures en trois zones. Celles-ci sont délimitées sur la figure 45. Les courbes $R_{60°}$ et $R_{20°}$ représentent, pour l'Al et le Mg, les valeurs du pouvoir réflecteur pour les angles d'incidence de 60 et 20 degrés en fonction de la longueur d'onde et λ_c la longueur d'onde criti-

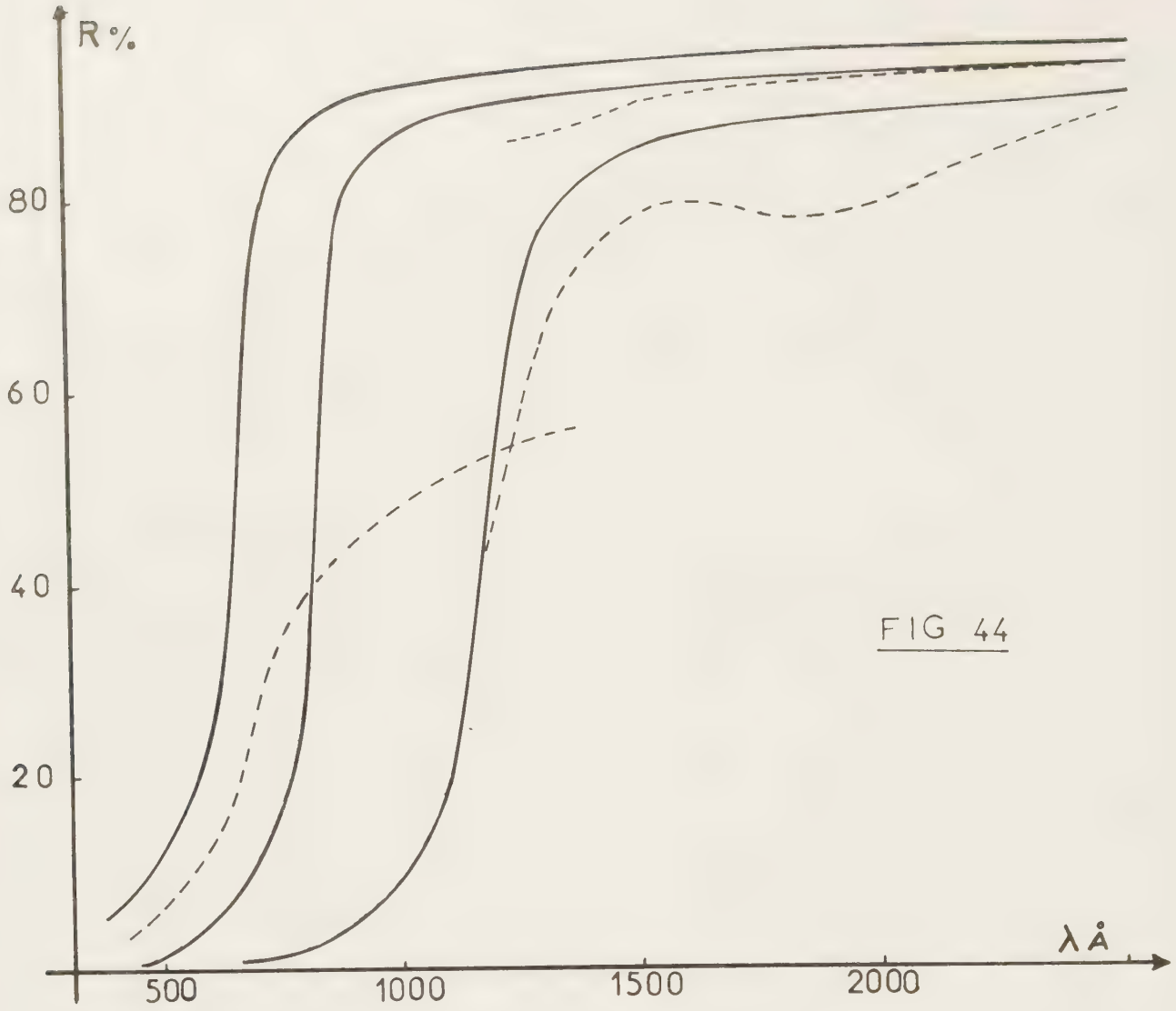

R %
80
60
40
20
500
1000
1500
2000
λ Å

FIG 44

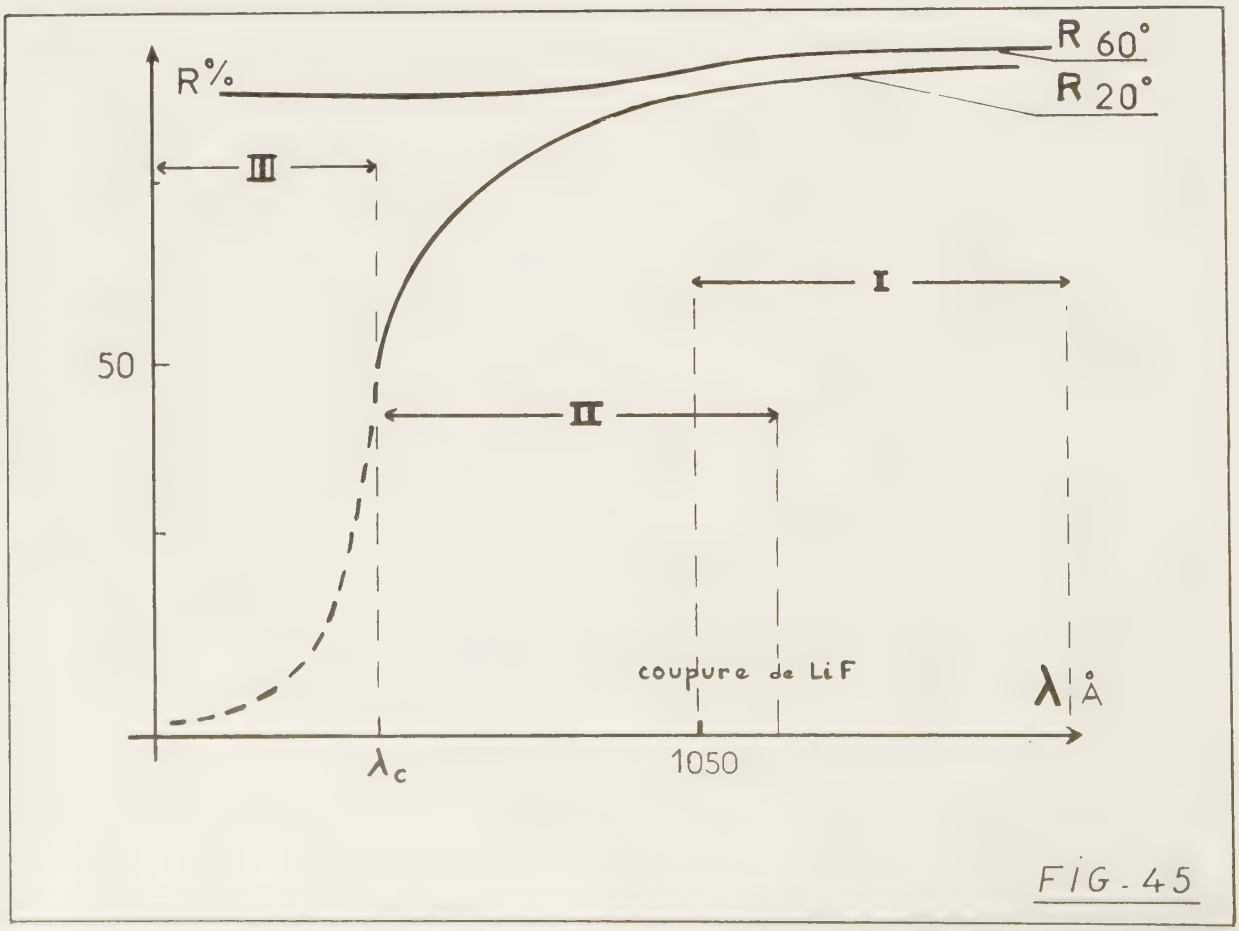

R %
R 60°
R 20°
III
I
II
50
coupure de LiF
λ Å
λc
1050

FIG-45

TABLEAU III-1

	Vitesse d'évaporation Å/s		Temps de formation des dépôts Seconde		Epaisseur optique Å	
	Maximum	Minimum	Maximum	Minimum	Maximum	Minimum
Al	200	30	30"	5"	1400	900
Mg	100	50	20"	10"	1800	1100

que de Al ou de Mg. Ces zones correspondent :

- pour la zone I, au domaine des mesures effectuées à l'aide de l'appareillage muni de fenêtres de LiF, pour les longueurs d'onde supérieures à 1100 Å.

- pour les zones II et III, au domaine de longueurs d'onde inférieures au seuil de sensibilité du détecteur, seuil situé au voisinage de λ = 1900 Å quand le récepteur est muni d'une photocathode en ICs.

Les valeurs mesurées du facteur de réflexion des dépôts, résultent :

- dans la zone I, de la comparaison des flux réfléchis par la couche étudiée d'une part, et par une couche étalon d'autre part.

- dans la zone II ($\lambda > \lambda_c$) du rapport $\frac{I_\theta}{I_o}$ (I.7) mesuré pour deux valeurs de θ (20 et 60°).

- dans la zone III ($\lambda < \lambda_c$) pour $R_{60°}$ du rapport $I_{60°}/I_o$

pour $R_{20°}$ d'un calcul théorique

à partir des valeurs des constantes optiques n et k obtenues par la méthode de l'angle critique et de l'application des relations *(A.IV,13)* et *(A.IV,25)* données par la théorie de Drude *(Annexe IV)**.

Aluminium (Fig. 46).

L'aluminium a été très étudié, car c'est un matériau de choix pour obtenir des surfaces fortement réfléchissantes dans un large domaine spectral |23| |63| |64|. La méthode d'évaporation à partir de cavaliers d'Al disposés sur une spirale de tungstène, chauffée par effet Joule, est le procédé le plus employé pour réaliser des dépôts de bonne qualité |65|. Même sous vide moyen (10^{-6}, 10^{-7} torr) le pouvoir réflecteur initial de couches d'aluminium est très élevé, il dépend beaucoup de la vitesse d'évaporation et croît quand celle-ci varie entre 1 et 100 $Å.s^{-1}$ |63|. Sous ultra-vide, il apparaît |66| |67| que la vitesse d'évaporation a moins d'influence et qu'elle peut varier dans une large gamme |63| sans affecter la qualité des dépôts.

---

* *(A.IV,13) représente la formule 13 donnée en Annexe IV.*

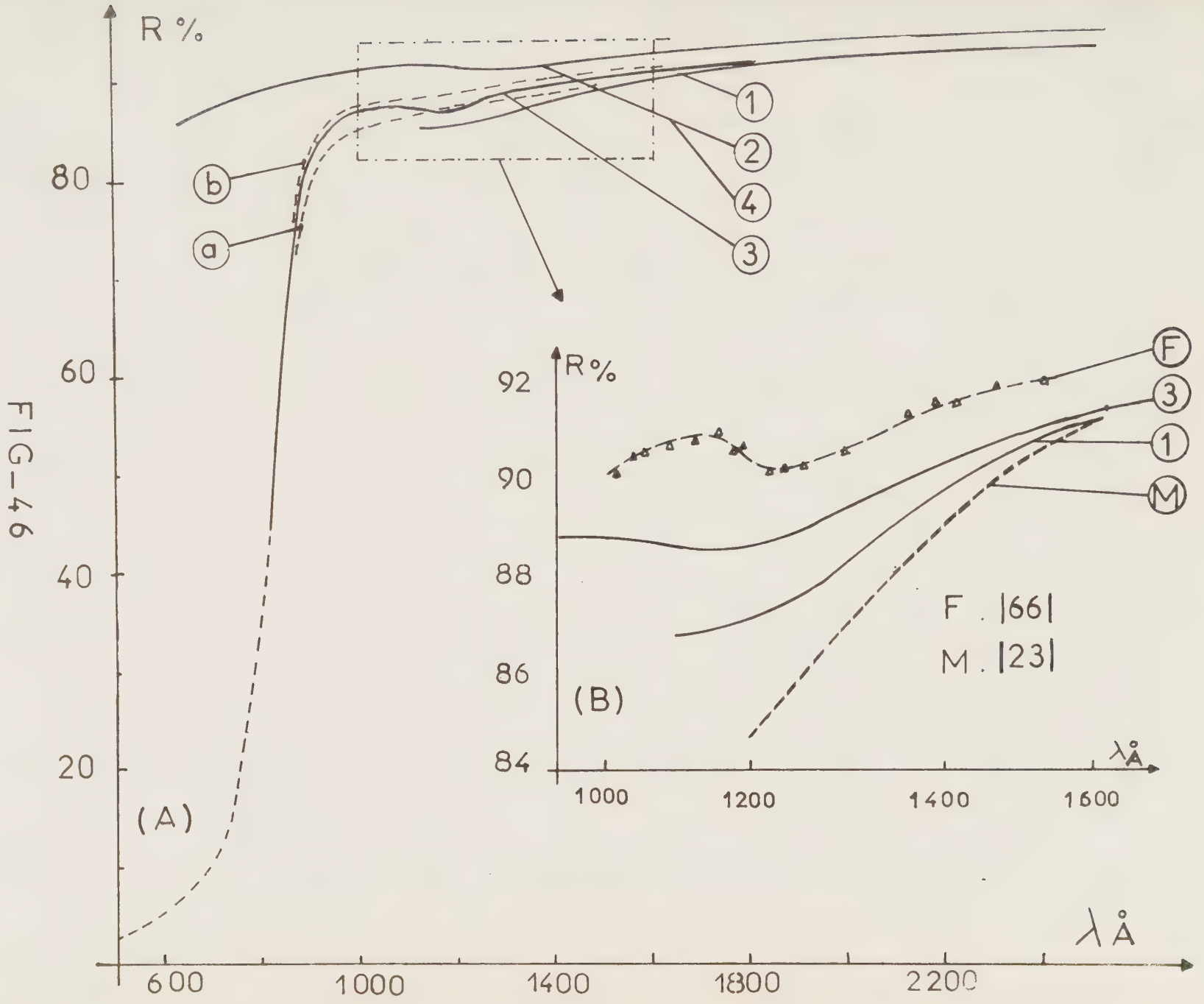

R %
80
60
40
20
(A)
600
1000
1400
1800
2200
λ Å
a
b
1
2
3
4
R%
92
90
88
86
84
(B)
1000
1200
1400
1600
λÅ
F
3
1
M
F . |66|
M . |23|

FIG-46

Nous avons reproduit sur la figure 46 (A) l'ensemble de nos résultats concernant les valeurs du pouvoir réflecteur des couches minces d'aluminium évaporées suivant la technique ci-dessus.

- Les courbes 1 et 2 représentent les valeurs de R_{20} et R_{60} relevées à l'aide du dispositif muni de fenêtres de LiF dans la zone I.

- Les courbes 3 et 4 (trait plein) ont été obtenues à l'aide du dispositif sans fenêtre, zones II et III. La partie pointillée de la courbe 3 correspond à la détermination de R_{20} pour la zone III.

Nous avons également reporté les valeurs théoriques de R_{20} permettant d'encadrer les valeurs expérimentales, déduites de la théorie de l'électron libre. Elles sont obtenues pour la valeur λ_c = 820 Å correspondant à l'abscisse du point d'inflexion de la courbe (3) et pour les deux valeurs de τ égales à 1.10^{-15} seconde (courbe a) et $1,1.10^{-15}$ seconde (courbe b).

Nous voyons que, mis à part le domaine spectral compris entre 1100 et 1600 Å, les courbes 1 et 3 se confondent. Nous avons tracé sur la figure 46 (B) les résultats obtenus pour R_{20} par *FEUERBACHER* (F) et *MADDEN* (M) et reporté nos mesures pour cette région spectrale . L'extension de l'échelle permet de mettre en évidence la zone de désaccord entre ces valeurs, compte tenu des erreurs expérimentales (estimées par les auteurs de ces mesures à ± 0,5 %), nous voyons que les écarts sont sensibles dans le domaine de longueurs d'onde inférieures à 1600 Å.

Nous verrons dans le paragraphe consacré au plasmon de surface, que ce désaccord n'est qu'apparent et qu'il est dû vraisemblablement à des échantillons présentant des états de surface différents.

Magnésium (Fig. 47).

Contrairement à l'aluminium, le magnésium a été peu étudié optiquement dans l'ultraviolet lointain. Les seules données concernant le pouvoir réflecteur du magnésium sont dues, à notre connaissance, aux travaux de *SABINE* en 1939 (courbe (1)) |68|. Des essais d'évaporation dans une enceinte munie d'un pompage par pompe à diffusion d'huile |37| n'ayant pu donner des dépôts de bonne qualité, nous avons effectué une étude préliminaire dans une enceinte non étuvée, munie de pompes ioniques

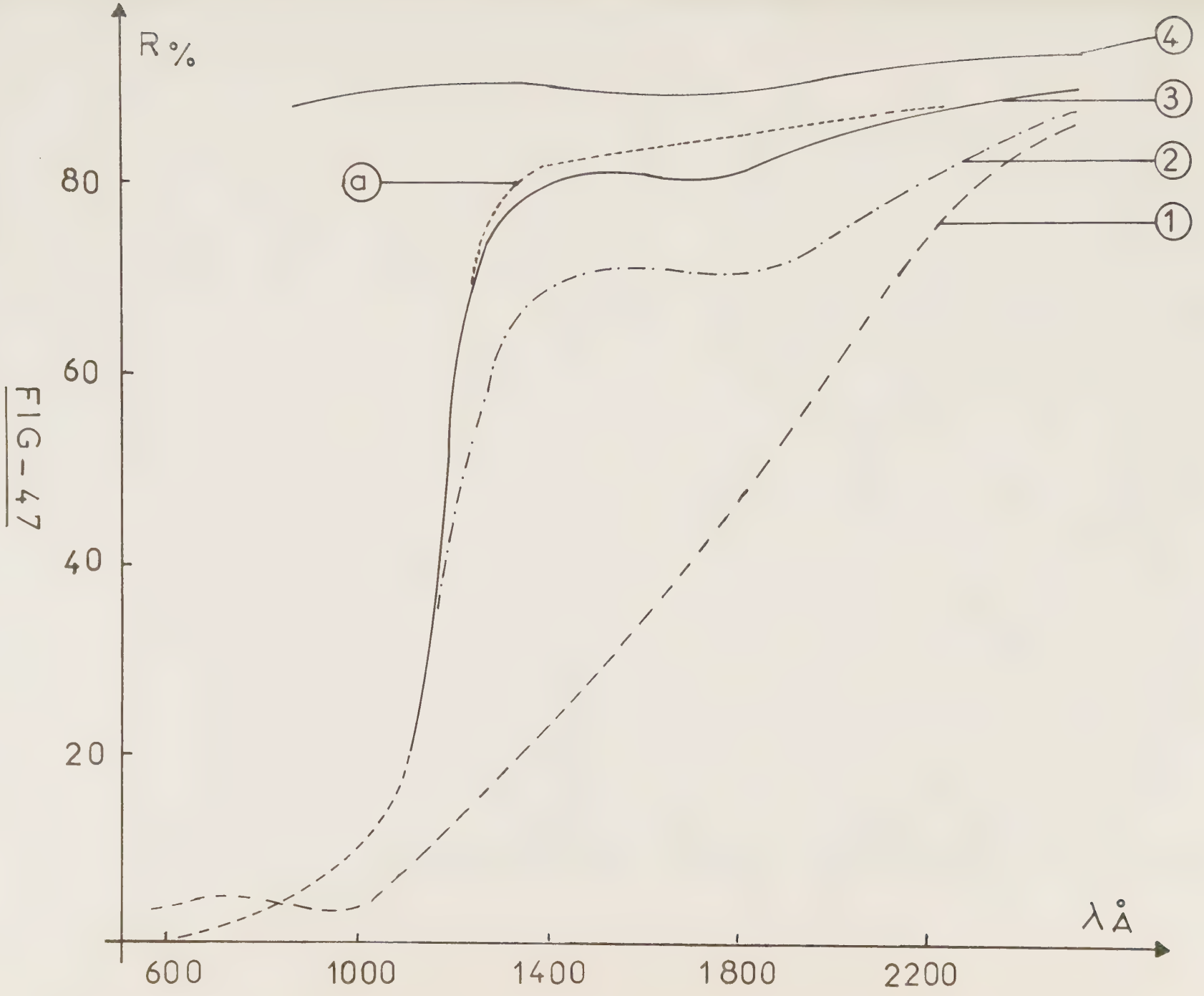


FIG-47

|69|. Les échantillons observés optiquement se sont alors avérés de bien meilleure qualité (courbe 2, Fig. 47) ; les vapeurs d'huile provoquant sans doute, au cours des tentatives précédentes, une réaction immédiate et privilégiée avec le magnésium,donnaient des dépôts d'aspect laiteux très diffusants. Ces essais nous ont également permis de constater que le procédé d'évaporation de poudre ou copeaux de magnésium, à partir de nacelles de tungstène ou de tantale, présentait de nombreux inconvénients (mauvaise répartition de la chaleur produisant des dégazages brusques et de fortes fluctuations de la vitesse d'évaporation). Par contre, notre méthode d'évaporation par sublimation de magnésium à partir de cylindre (longueur 30 mm, diamètre 5 mm) contenu dans une spirale de tungstène, permet une meilleure répartition de la chaleur, un taux d'évaporation plus régulier et plus élevé, et une évaporation totale du produit. Les qualités optiques de couches de magnésium évaporées à 10^{-10} torr |70| (courbes 3 et 4) sont ainsi très proches des prévisions théoriques (courbe a) calculées pour un temps de relaxation $\tau = 1.10^{-15}$ s. et pour $\lambda_c = 1195$ Å.

On doit signaler un creux de réflexion au voisinage de 1700 Å (dû au plasmon de surface) relativement plus élevé que celui de l'aluminium et observé pour la première fois par une méthode optique. Une étude récente de *GESELL* |71| rend compte de valeurs très proches des nôtres et confirme l'allure générale des courbes de pouvoir réflecteur en incidence normale.

III.1.2 - Constantes optiques de Al et de Mg.

A partir des résultats expérimentaux indiqués dans le paragraphe précédent, nous avons évalué les constantes optiques de l'aluminium et du magnésium par l'utilisation des méthodes décrites au chapitre I.

Méthode de l'angle critique.

La précision avec laquelle nous pouvons déterminer les constantes optiques dépend beaucoup des valeurs relatives des indices n_2 et k_2. Nous avons vu au chapitre I que l'on peut connaître en première approximation l'indice n_2 par la relation $n_2 = \sin \theta_M$ (θ_M étant l'angle d'incidence par lequel la courbe du pouvoir réflecteur $R(\theta)$ présente la pente maximum). Nous avons représenté sur les figures 48 et 49 les valeurs théoriques de $R(\theta)$ calculées à partir des relations de Fresnel pour $n_2 = 0{,}33$ (fig. 48) et pour $n_2 = 0{,}80$ (fig. 49), l'indice k_2 variant dans chaque cas entre 0 et 0,2. Comme on peut le voir sur ces figures, l'erreur que l'on commet en assimilant n_2 à la valeur $\sin \theta_M$ croît avec k_2. Si l'on connait k_2 avec précision on peut cependant déterminer l'erreur que l'on commet en écrivant que $n_2 = \sin \theta_M$.

D'après un travail de HUNTER |20| *nous avons sur la figure 50 tracé les abaques destinés à évaluer cette grandeur, nous rappelons sur un exemple comment on peut évaluer* n_2 *connaissant* k_2 *et* θ_M.

soit $\theta_M = 49°5 \quad \sin \theta_M = 0{,}76$

si k_2 *est égal à* 0,2, *la figure 50 montre que* n_2 *est alors égal à* 0,6 *au lieu de* 0,76 *(valeur qui conduirait à une erreur de 26 %).*

k_2 peut être connu avec une bonne précision (1 unité sur la 2ème décimale) par l'allure générale de la courbe $R(\theta)$ expérimentale comme on peut le voir sur les figures 48 et 49, courbes en pointillés.

D'après la figure 50, on voit que l'imprécision sur l'évaluation de n_2 dépend de k_2 quand celui-ci est supérieur à 0,05.

- pour $k_2 < 0{,}05$, la précision sur n_2 est liée à la précision de la mesure de θ_M.

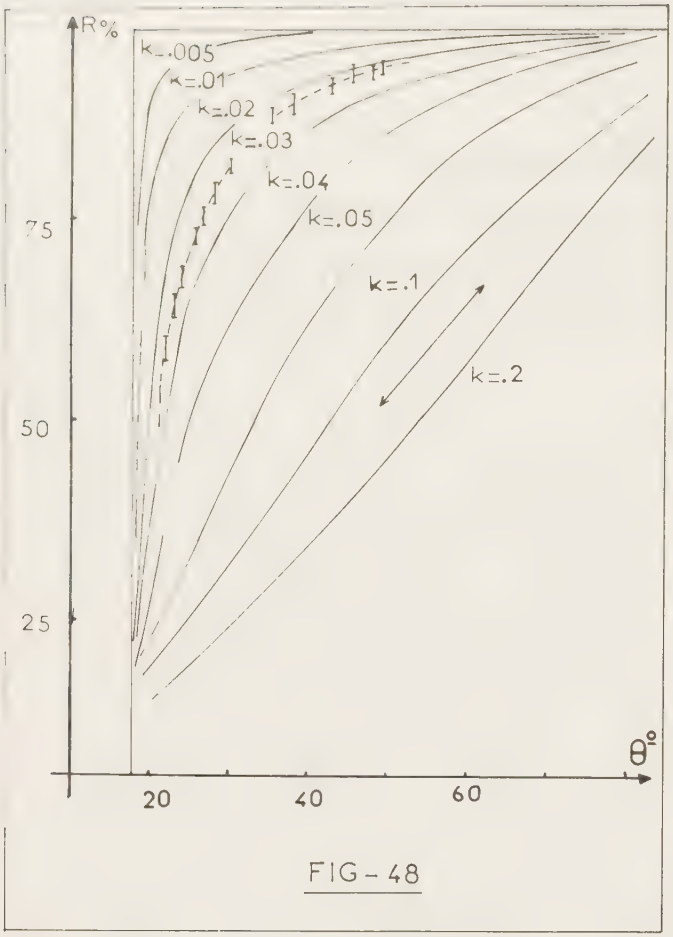


FIG - 48

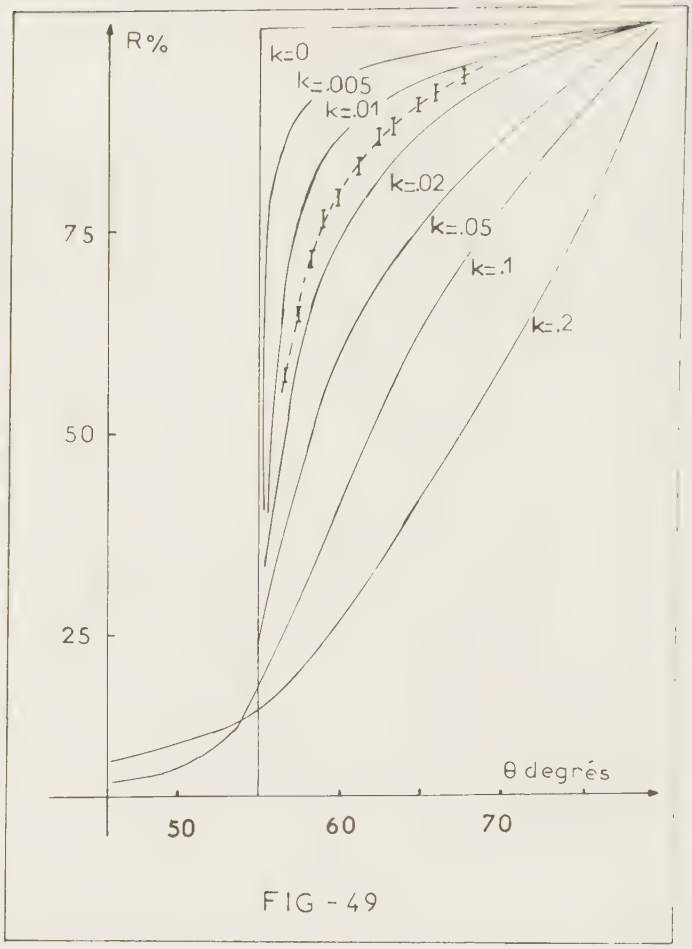


FIG - 49

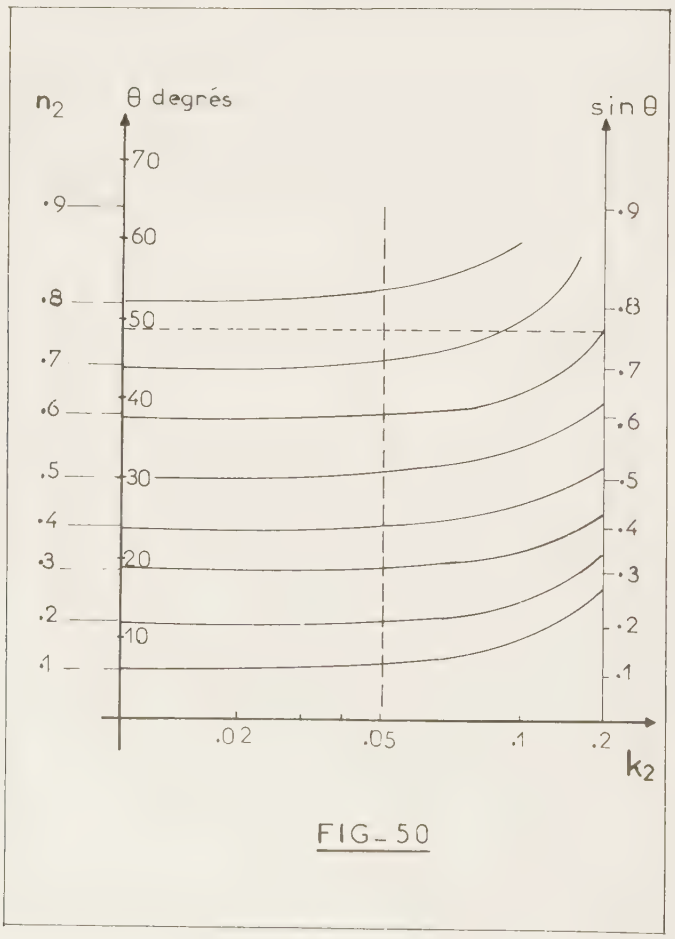


FIG - 50

Notre dispositif de mesures permettant d'apprécier un angle à $\pm \frac{1}{2}$ degré près, nous aurons pour des angles θ_M variant entre 20 et 65 degrés (ce qui représente les angles limites réellement observés pour l'aluminium et le magnésium) une erreur sur n_2 définie par :

$$n_2 = \sin (\theta_M^\circ \pm \frac{1}{2}) \quad \text{soit pour } 20^\circ \rightarrow n_2 = (0{,}34 \pm 0{,}01)$$

$$65^\circ \rightarrow n_2 = (0{,}906 \pm 0{,}004)$$

- pour $k_2 > 0{,}05$ les valeurs de θ_M correspondent pour Al et Mg à des angles compris entre 20 et 40 degrés. A l'erreur sur l'angle estimée ci-dessus à 0,01 au maximum s'ajoute l'erreur sur les valeurs fournies par les abaques de la figure 50, soit une erreur de lecture sur les ordonnées de $\pm$ 0,01. Ainsi l'erreur globale sur n_2 peut être évaluée à $\pm$ 0,02 de la valeur absolue.

Pour l'aluminium dont la longueur d'onde critique est $\lambda_c = 820$ Å, nous avons reporté sur la figure 51, pour six longueurs d'onde du domaine d'application de la méthode, les variations du pouvoir réflecteur observées en fonction de l'angle d'incidence. Les valeurs n_2, k_2, θ_M retenues sont indiquées pour chacune de ces longueurs d'onde.

Sur la figure 52, nous avons rassemblé pour le domaine spectral 500 - 820 Å, nos résultats et ceux de différents auteurs.

La courbe (1) en trait plein représente les indices n_2 et k_2 que nous avons mesurés.

La courbe (2) en traits discontinus indique le domaine spectral dans lequel on tient compte de la correction à appliquer sur $n_2 = \sin \theta_M$ quand k_2 devient supérieur à 0,05.

La courbe (3) en pointillés correspond aux valeurs théoriques calculées par la théorie de l'électron libre (*A.IV,13*) et (*A.IV,25*) en prenant $\lambda_c = 820$ Å et $\tau = 1.10^{-15}$ seconde. Si l'accord pour l'indice de réfraction n_2 est bon entre les valeurs théoriques (3) et expérimentales (1), l'écart sur k_2 que l'on constate entre les courbes 1 et 3 pour les valeurs décroissantes des longueurs d'onde provient du fait que la théorie de l'électron libre ne tient pas compte des transitions interbandes.

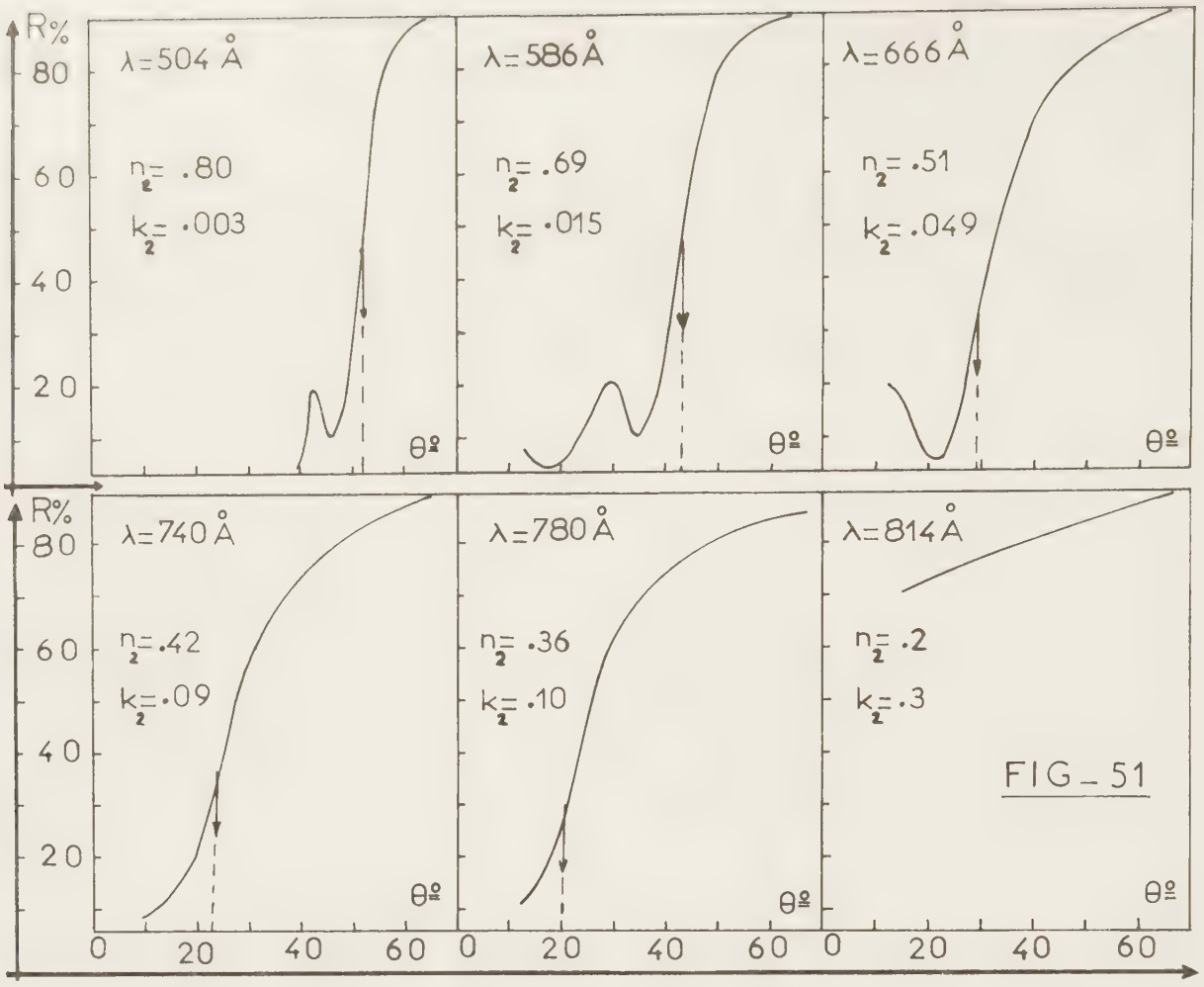

R%
80
60
40
20
λ=504 Å
n₂= .80
k₂= .003
λ=586 Å
n₂= .69
k₂= .015
λ=666 Å
n₂= .51
k₂= .049
λ=740 Å
n₂= .42
k₂= .09
λ=780 Å
n₂= .36
k₂= .10
λ=814 Å
n₂= .2
k₂= .3
θ°
0
20
40
60

FIG – 51

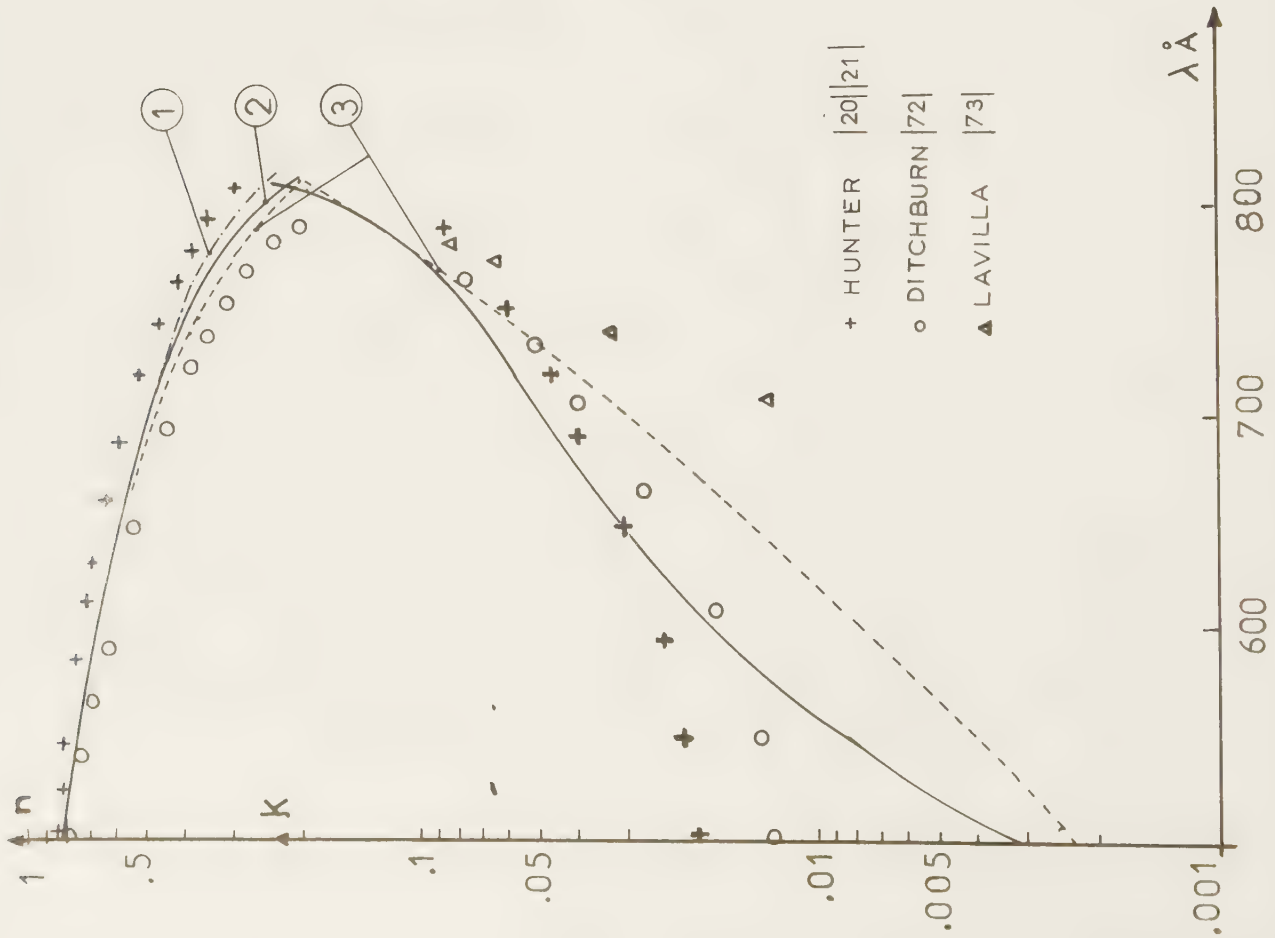

1
2
3
+ HUNTER |20||21|
o DITCHBURN |72|
▲ LAVILLA |73|
λ Å
800
700
600
n
K
1
.5
.1
.05
.01
.005
.001

FIG – 52

Les résultats expérimentaux représentés par :

- *Les croix* (+) concernent les travaux de *HUNTER* |20| |21| pour des couches minces préparées à 10^{-6} torr et examinées également par la méthode de l'angle critique. Ces résultats ont d'ailleurs servi de base à notre étude. L'accord entre les valeurs données par *HUNTER* et nos mesures est bon malgré les différences de préparation des échantillons, car *HUNTER* a tenu compte de la couche d'oxyde superficielle pour évaluer les constantes optiques de l'aluminium |21|. Il a pu ainsi se ramener à l'étude d'une surface d'aluminium pur.

- *Les cercles* (o) indiquent les valeurs relevées par *DITCHBURN et FREEMAN* |72| par une méthode de transmission sur des couches d'aluminium sans support réalisées sous vide puis remises à l'air pour être transférées dans le réflectomètre.

- *Les triangles* (Δ) sont les valeurs de n_2 et k_2 déduites par *LAVILLA et MENDLOWITZ* |73| à partir des mesures sur la diffusion d'électrons par les surfaces d'aluminium.

Pour le magnésium dont la longueur d'onde critique est 1195 Å, nous avons effectué une étude identique à celle de l'aluminium. Le comportement du magnésium est semblable à celui de l'aluminium comme on peut le voir en comparant la figure 51 à la figure 53 qui représente pour 4 longueurs d'onde les variations de $R(\theta)$ en fonction de l'angle d'incidence. Nous avons reporté sur la figure 54, courbe (1) en trait continu, les valeurs des constantes optiques que nous avons mesurées dans l'intervalle spectral 500-1200 Å |70|. Les valeurs de l'indice d'extinction k_2 du magnésium étant inférieures à 0,05 pour les longueurs d'onde inférieures à 1000 Å, la correction sur n_2 n'a été appliquée que dans le domaine 1000 Å à 1200 Å. La courbe en traits discontinus indique les valeurs de $\sin \theta_M$; elle montre l'influence de k_2 sur la détermination de n_2 pour Mg. Sur cette figure,

- les indices n_2 et k_2 déduits de la théorie de Drude pour les paramètres λ_c = 1195 Å et $\tau = 1{,}1.10^{-15}$ seconde sont donnés par les ordonnées des courbes (3) en pointillés.

- les valeurs représentées par une croix (+) ont été obte-

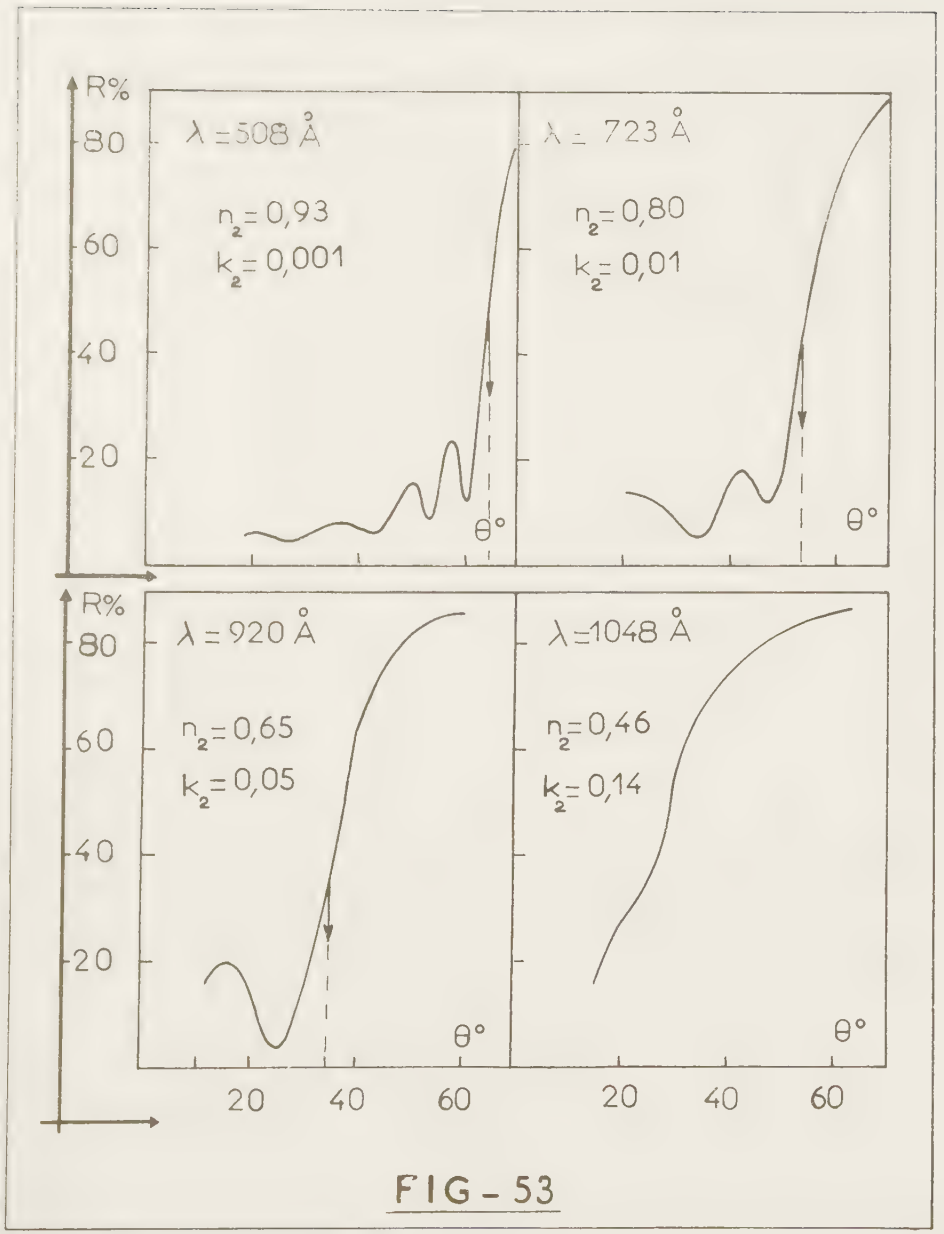

R%
80
60
40
20
λ = 508 Å
n_2 = 0,93
k_2 = 0,001
θ°
λ = 723 Å
n_2 = 0,80
k_2 = 0,01
θ°
R%
80
60
40
20
λ = 920 Å
n_2 = 0,65
k_2 = 0,05
θ°
λ = 1048 Å
n_2 = 0,46
k_2 = 0,14
θ°
20
40
60
20
40
60

FIG - 53

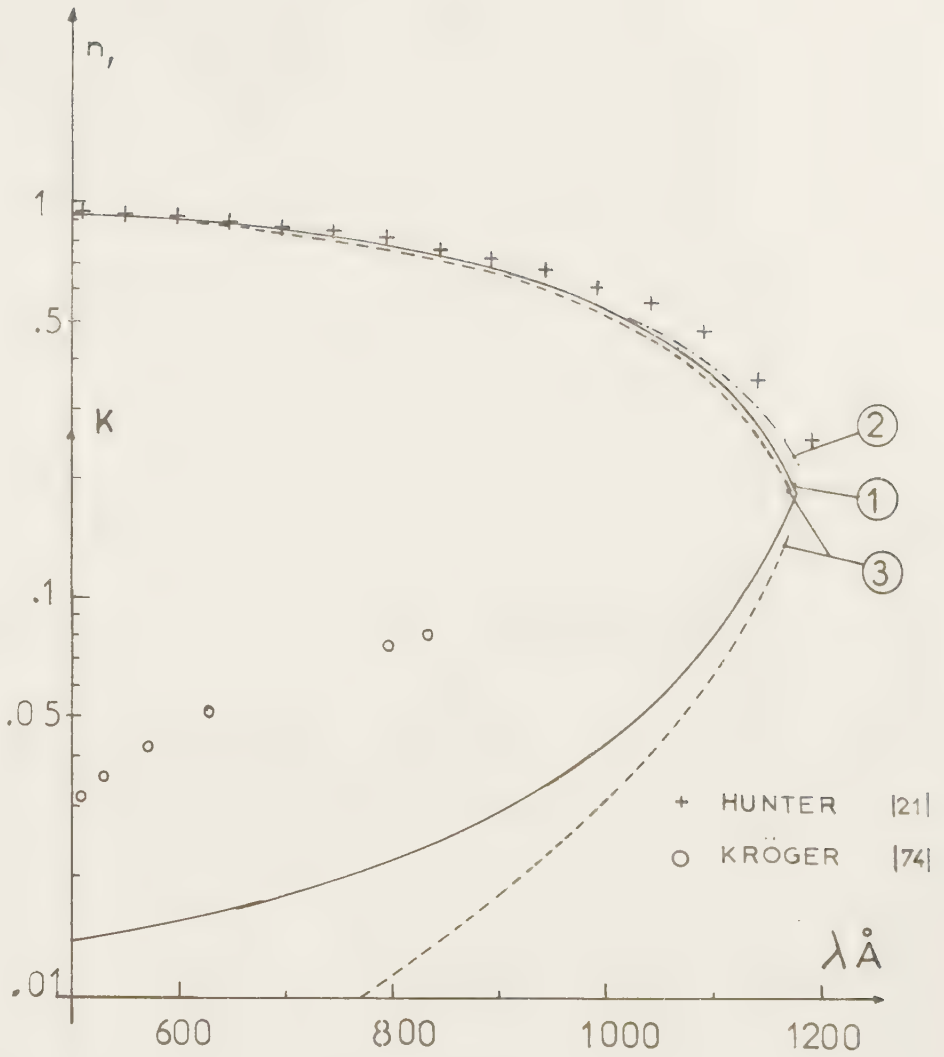

n_1
1
.5
K
.1
.05
.01
2
1
3
+ HUNTER [21]
○ KRÖGER [74]
λ Å
600
800
1000
1200

FIG - 54

nues par *HUNTER* |21| par la même méthode pour des couches minces de magnésium réalisées à 10^{-6} torr.

- Enfin les valeurs de k_2 représentées par un cercle (o) ont été évaluées par spectrographie par *KROGER et TOMBOULIAN* |74|.

On constate une dispersion des résultats plus grande que dans le cas de l'aluminium. Il convient de signaler par exemple que *HUNTER*, opérant à 10^{-6} torr, n'a pas tenu compte |21| comme pour l'aluminium de la couche superficielle d'oxyde qui se forme sous cette pression durant l'expérience. Il faut noter que, si pour l'aluminium les constantes optiques et l'épaisseur de l'alumine sont assez bien connues, par contre, les données sur la couche superficielle qui se forme sur la surface du magnésium sont moins bien définies. En effet, dans le cas de l'aluminium, la couche d'alumine protectrice est stable, par contre, dans le cas du Mg, la couche d'oxyde ou d'hydroxyde de magnésium évolue constamment au fur et à mesure de son vieillissement et son épaisseur en particulier, peut difficilement être évaluée.

On voit ainsi que les conditions expérimentales ont, dans de tels cas, une importance considérable pour l'étude optique des couches minces, et seul l'examen sous ultravide permet une observation satisfaisante pendant un temps suffisamment long.

Méthode des deux angles d'incidence *(TOUSEY)*.

Les constantes optiques ont été déterminées dans le domaine de longueurs d'onde supérieures à λ_c à l'aide de la méthode de Tousey utilisant les valeurs expérimentales du pouvoir réflecteur mesuré pour deux ou trois angles d'incidence. L'utilisation pratique de cette méthode ne présente pas de difficulté et permet d'obtenir de bons résultats si les tables numériques ont un pas de variation de n et k suffisamment petit et si les valeurs du pouvoir réflecteur sont obtenues avec une bonne précision. Etant donné que l'aluminium et le magnésium sont des corps fortement réfléchissants, les valeurs absolues du pouvoir réflecteur pour deux angles d'incidence (même éloignés : par exemple 20° et 60°) sont très proches

l'une de l'autre ; l'erreur commise sur la mesure expérimentale du pouvoir réflecteur ne permet pas d'obtenir dans ce cas une précision comparable à celle que l'on avait par la méthode précédente.

Nous avons reporté sur la figure 55 et la figure 56 les valeurs n_2 et k_2 de l'aluminium et du magnésium déterminées par cette méthode (courbes en trait plein). En tenant compte d'une erreur égale à $\pm$ 0,5 % sur le pouvoir réflecteur, nous avons également indiqué le domaine d'incertitude de ces constantes (courbes en pointillés). Ce domaine s'élargit avec la longueur d'onde, c'est-à-dire au fur et à mesure que les courbes $R_{20°}$ et $R_{60°}$ se rapprochent l'une de l'autre.

Méthode de Kramers Kronig.

Afin d'obtenir un résultat plus précis dans la région des grandes longueurs d'onde (λ > 1900 Å), nous avons, en utilisant les relations de dispersion de Kramers-Kronig et le programme de calcul donné dans *l'Annexe (I)* calculé les constantes optiques de l'aluminium et du magnésium ; ces valeurs sont reportées sur les figures 57 et 58. Cette méthode est en effet moins sensible à la "vraie" valeur absolue du pouvoir réflecteur qu'aux variations du pouvoir réflecteur. Il suffit pour procéder à l'ajustage de choisir deux valeurs des constantes optiques bien connues par une autre méthode, ces valeurs étant relatives à des longueurs d'onde aussi éloignées que possible l'une de l'autre. Pour l'aluminium, la méthode de l'angle critique nous a donné n_2 et k_2 mesurées à 666 Å, et la méthode de Tousey, les valeurs n_2' et k_2' déterminées à 1608 Å. Pour le magnésium, les couples de valeurs n_2, k_2 et n_2', k_2' ont été choisis pour les longueurs d'onde de 666 Å et 1216 Å. Ces longueurs d'onde ont été retenues en raison de la forte intensité lumineuse fournie par les sources utilisées pour ces longueurs d'onde. On doit remarquer que l'application de la méthode de Tousey est, pour l'aluminium, un peu moins précise à 1608 Å qu'à 1216 Å, et que pour le magnésium, la longueur d'onde de 1608 Å est plus favorable que celle de 1216 Å, car le domaine spectral d'ajustage est plus grand, mais nous avons été contraints à ces choix par l'existence d'un plasmon de surface, dans la région de 1200 Å pour Al et de 1600 Å pour Mg.

Nous avons indiqué sur la figure 59 pour Al et sur la figure 60 pour Mg (en coordonnées semi-logarithmiques) les valeurs moyennes des in-

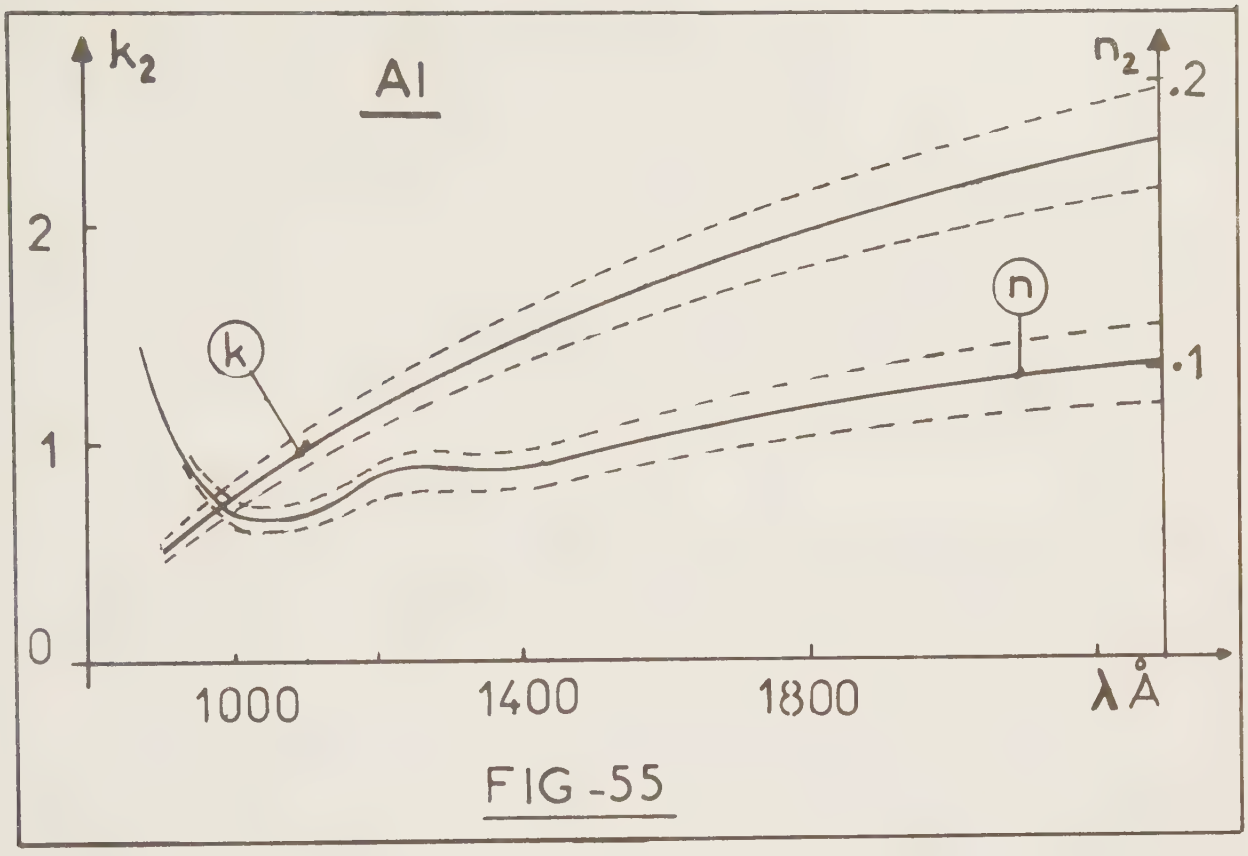

Al
k_2
n_2
2
1
0
.2
.1
k
n
1000
1400
1800
λÅ

FIG-55

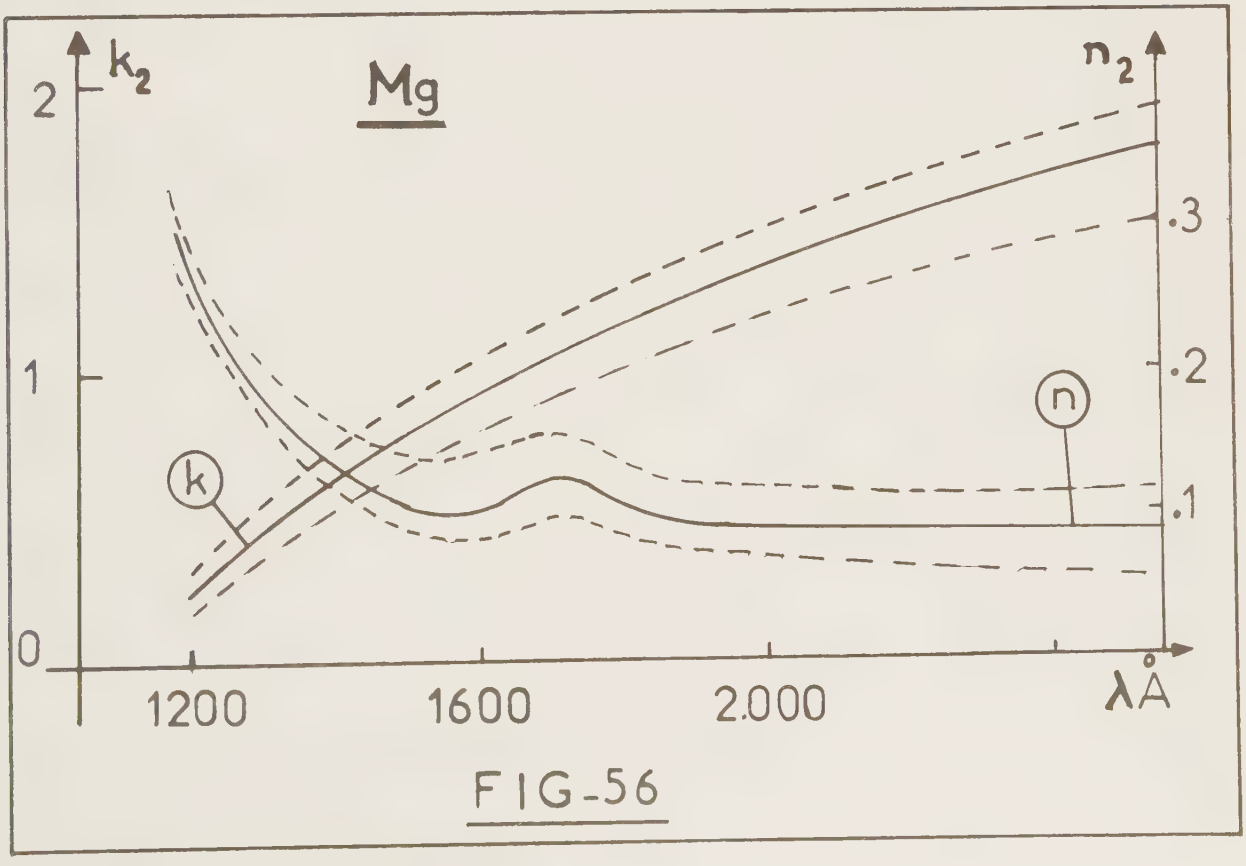

Mg
k_2
n_2
2
1
0
.3
.2
.1
k
n
1200
1600
2.000
λÅ

FIG-56

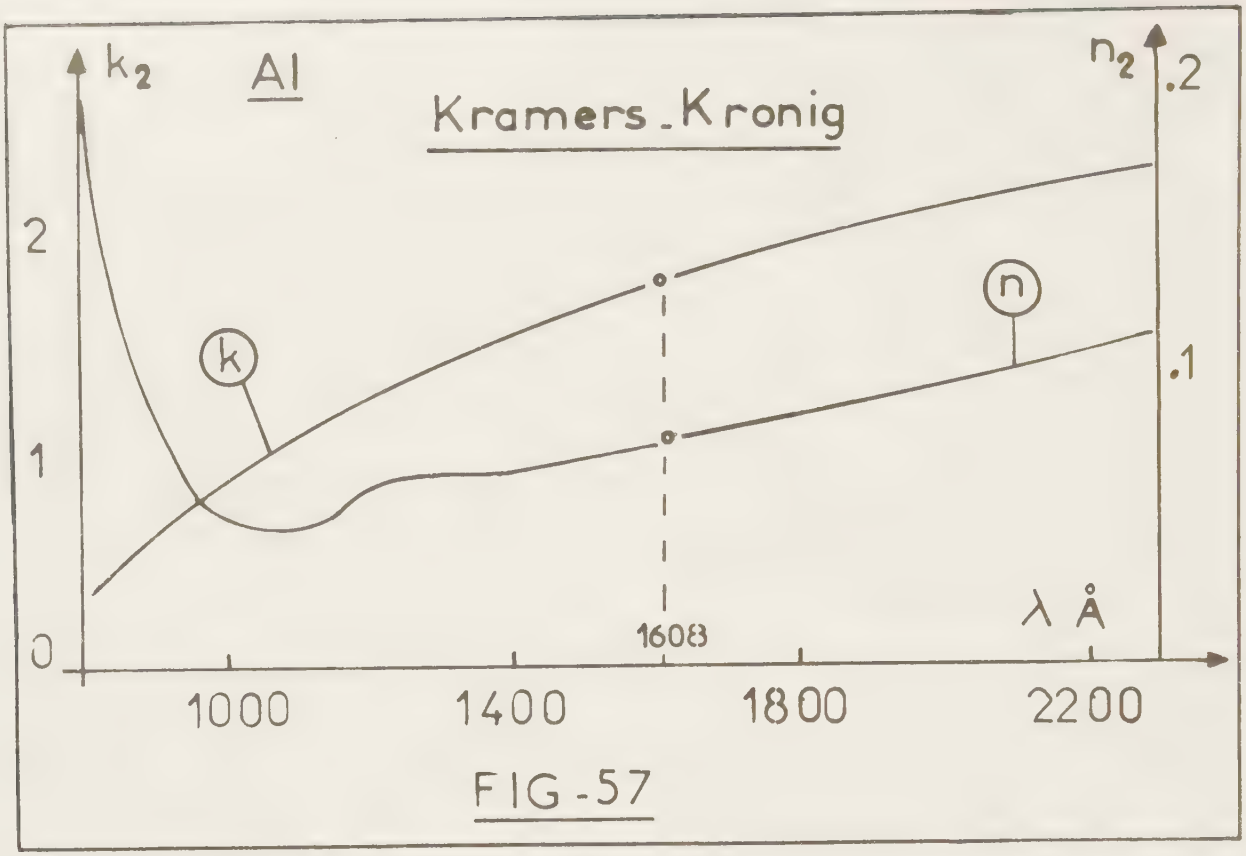

k2
Al
Kramers_Kronig
n2
.2
2
1
0
k
n
.1
λ Å
1608
1000
1400
1800
2200

FIG-57

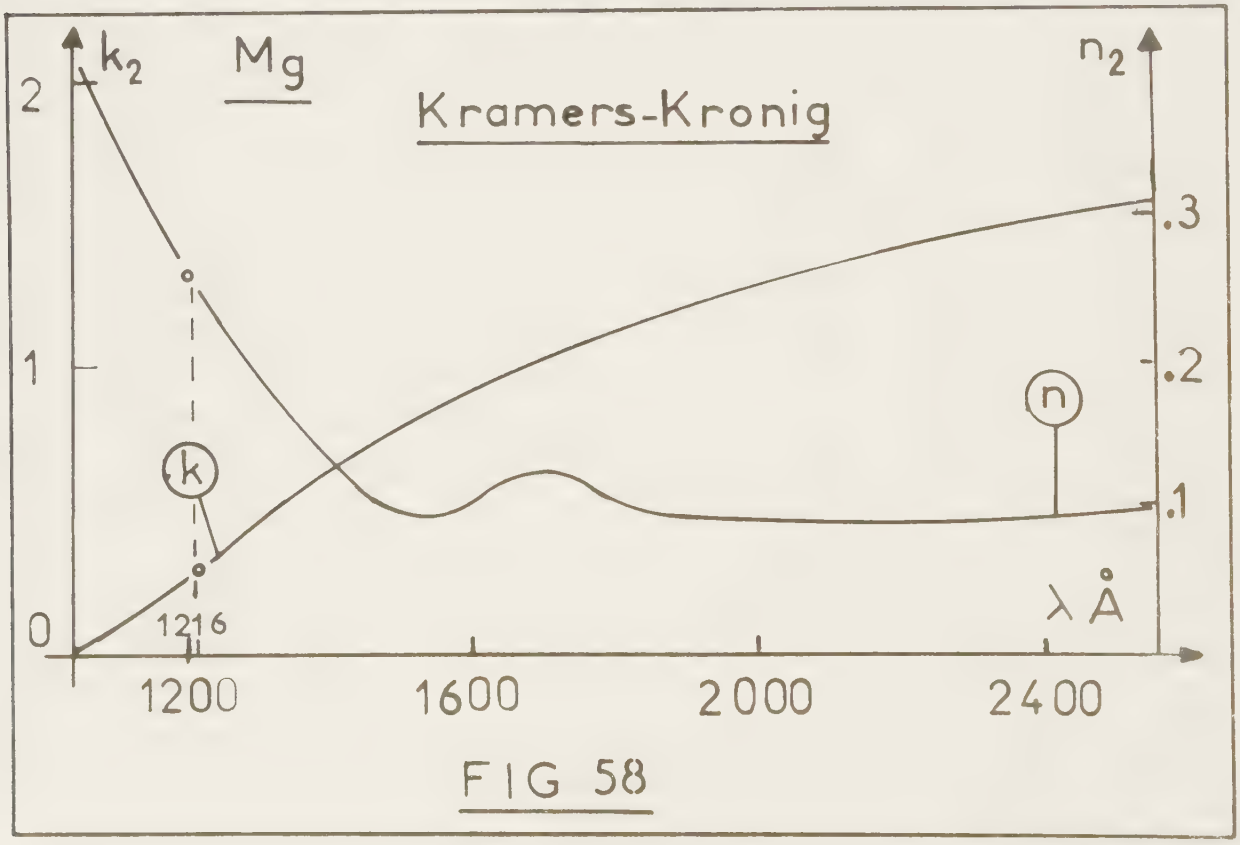

k2
Mg
Kramers-Kronig
n2
2
1
0
.3
.2
.1
k
n
λ Å
1216
1200
1600
2000
2400

FIG 58

dices n_2 et k_2 pour le domaine 500 - 2500 Å correspondant aux résultats obtenus par l'application des trois méthodes, (Tableau III-2 et III-3).

Nous expliquerons ci-dessous l'anomalie apparente des valeurs des indices correspondant aux longueurs d'onde où le plasmon de surface de Al et Mg est excité. Cette excitation n'étant pas possible quand les couches examinées sont parfaitement planes *(Annexe V)*, nous avons représenté par les parties de courbes en pointillés les valeurs hypothétiques de dépôts plans.

Méthode "des compositions d'indices".

Connaissant les constantes optiques (n_3,k_3) du pyrex dans la région spectrale où les dépôts d'aluminium et de magnésium sont "transparents", nous avons pu vérifier à l'aide des mesures du pouvoir réflecteur pour les angles d'incidence inférieurs à l'angle critique que ces valeurs permettent d'évaluer (n_2 et k_2) du corps étudié à l'aide des relations (I.25). Cependant, les grandeurs ainsi déterminées sont obtenues avec moins de précision que par la méthode de l'angle critique car les couches métalliques étant un peu "absorbantes" et le support en pyrex peu réfléchissant , les facteurs de réflexion sont peu élevés. Cette méthode par contre fournira de meilleurs renseignements dans le cas de faibles valeurs de l'indice d'absorption et pour des sous-couches plus fortement réfléchissantes que les supports en pyrex utilisés ici.

TABLEAU III-2

CONSTANTES OPTIQUES DE L'ALUMINIUM

LAMBDA	ENERGIE	R	N	K	ALPHA
2500.	4.958	.930	.090	2.010	.010103
2400.	5.165	.930	.090	2.011	.010529
2300.	5.390	.930	.091	2.012	.010992
2200.	5.635	.930	.091	2.014	.011503
2100.	5.903	.930	.092	2.022	.012099
2050.	6.047	.928	.093	2.004	.012284
2000.	6.198	.926	.094	1.980	.012440
1950.	6.357	.924	.095	1.949	.012559
1900.	6.524	.922	.094	1.914	.012658
1850.	6.701	.920	.094	1.875	.012736
1800.	6.887	.918	.093	1.833	.012796
1750.	7.084	.916	.092	1.787	.012832
1700.	7.292	.914	.090	1.739	.012854
1650.	7.513	.912	.088	1.688	.012855
1600.	7.748	.911	.085	1.633	.012825
1550.	7.998	.908	.084	1.576	.012777
1500.	8.264	.906	.081	1.517	.012708
1450.	8.549	.904	.078	1.454	.012601
1400.	8.855	.902	.075	1.389	.012467
1350.	9.182	.895	.076	1.320	.012287
1300.	9.536	.890	.074	1.250	.012083
1280.	9.685	.888	.074	1.221	.011987
1260.	9.838	.884	.074	1.191	.011878
1240.	9.997	.880	.075	1.161	.011765
1220.	10.161	.874	.076	1.131	.011649
1200.	10.330	.870	.077	1.101	.011529
1180.	10.505	.860	.079	1.072	.011416

TABLEAU III-2

1160.	10.687	.863	.078	1.044	.011309
1140.	10.874	.863	.074	1.014	.011177
1120.	11.068	.864	.071	.981	.011006
1100.	11.270	.866	.068	.948	.010829
1080.	11.478	.868	.064	.912	.010611
1060.	11.695	.870	.061	.874	.010361
1040.	11.920	.870	.059	.834	.010077
1020.	12.153	.867	.058	.792	.009757
1000.	12.397	.865	.056	.749	.009412
980.	12.650	.860	.056	.704	.009027
960.	12.913	.852	.057	.657	.008600
940.	13.188	.842	.058	.608	.008128
920.	13.475	.830	.060	.556	.007594
900.	13.774	.818	.062	.499	.006967
880.	14.087	.798	.067	.435	.006211
870.	14.249	.781	.071	.400	.005777
860.	14.415	.760	.077	.363	.005304
850.	14.584	.744	.081	.322	.004760
840.	14.758	.700	.095	.274	.004099
830.	14.936	.642	.116	.226	.003421
820.	15.118	.560	.148	.178	.002727
810.	15.304	.465	.192	.140	.002171
800.	15.496	.380	.240	.115	.001806
780.	15.893	.270	.318	.086	.001385
760.	16.311	.206	.377	.067	.001107
740.	16.752	.159	.430	.039	.000662
700.	17.710	.102	.515	.034	.000610
680.	18.230	.084	.552	.044	.000813
660.	18.783	.065	.594	.049	.000932
640.	19.370	.051	.632	.043	.000844

TABLEAU III-2

620.	19.995	.041	.662	.028	.000567
600.	20.661	.032	.695	.021	.000439
580.	21.374	.027	.715	.015	.000324
560.	22.137	.022	.737	.005	.000112
540.	22.957	.019	.756	.003	.000069
520.	23.840	.015	.781	.002	.000048

TABLEAU III-3

CONSTANTES OPTIQUES DU MAGNESIUM

LAMBDA	ENERGIE	R	N	K	ALPHA
2500.	4.958	.902	.090	1.676	.008424
2400.	5.165	.902	.088	1.626	.008513
2300.	5.390	.901	.093	1.612	.008807
2200.	5.635	.896	.092	1.535	.008767
2100.	5.903	.878	.100	1.449	.008670
2000.	6.198	.870	.100	1.359	.008538
1900.	6.524	.850	.106	1.270	.008399
1800.	6.887	.835	.105	1.157	.008077
1700.	7.292	.805	.114	1.048	.007746
1650.	7.513	.807	.107	1.006	.007661
1600.	7.748	.810	.100	.954	.007492
1550.	7.998	.815	.092	.895	.007256
1500.	8.264	.820	.083	.828	.006936
1450.	8.549	.815	.080	.755	.006543
1400.	8.855	.810	.076	.678	.006085
1350.	9.182	.795	.077	.592	.005510
1325.	9.356	.780	.080	.546	.005178
1300.	9.536	.765	.083	.497	.004804
1275.	9.723	.750	.085	.442	.004356
1250.	9.917	.715	.095	.382	.003840
1225.	10.120	.675	.107	.311	.003190
1200.	10.330	.575	.145	.234	.002450
1195.	10.374	.550	.155	.218	.002292
1190.	10.417	.527	.165	.202	.002133
1185.	10.461	.500	.177	.186	.001972
1180.	10.505	.475	.189	.163	.001735
1175.	10.550	.399	.231	.153	.001636

TABLEAU III-3

1150.	10.780	.320	.283	.144	.001573
1125.	11.019	.256	.333	.121	.001351
1100.	11.270	.208	.378	.101	.001153
1075.	11.532	.166	.424	.085	.000993
1050.	11.806	.136	.464	.074	.000885
1025.	12.094	.111	.503	.065	.000796
1000.	12.397	.094	.532	.054	.000678
975.	12.714	.075	.571	.043	.000554
950.	13.049	.062	.602	.036	.000476
925.	13.402	.048	.641	.035	.000475
900.	13.774	.042	.661	.035	.000488
850.	14.584	.028	.714	.029	.000428
800.	15.496	.020	.753	.024	.000376
750.	16.529	.013	.796	.022	.000368
700.	17.710	.009	.821	.017	.000305
650.	19.072	.005	.861	.011	.000212
600.	20.661	.003	.885	.010	.000209
550.	22.540	.002	.910	.005	.000114

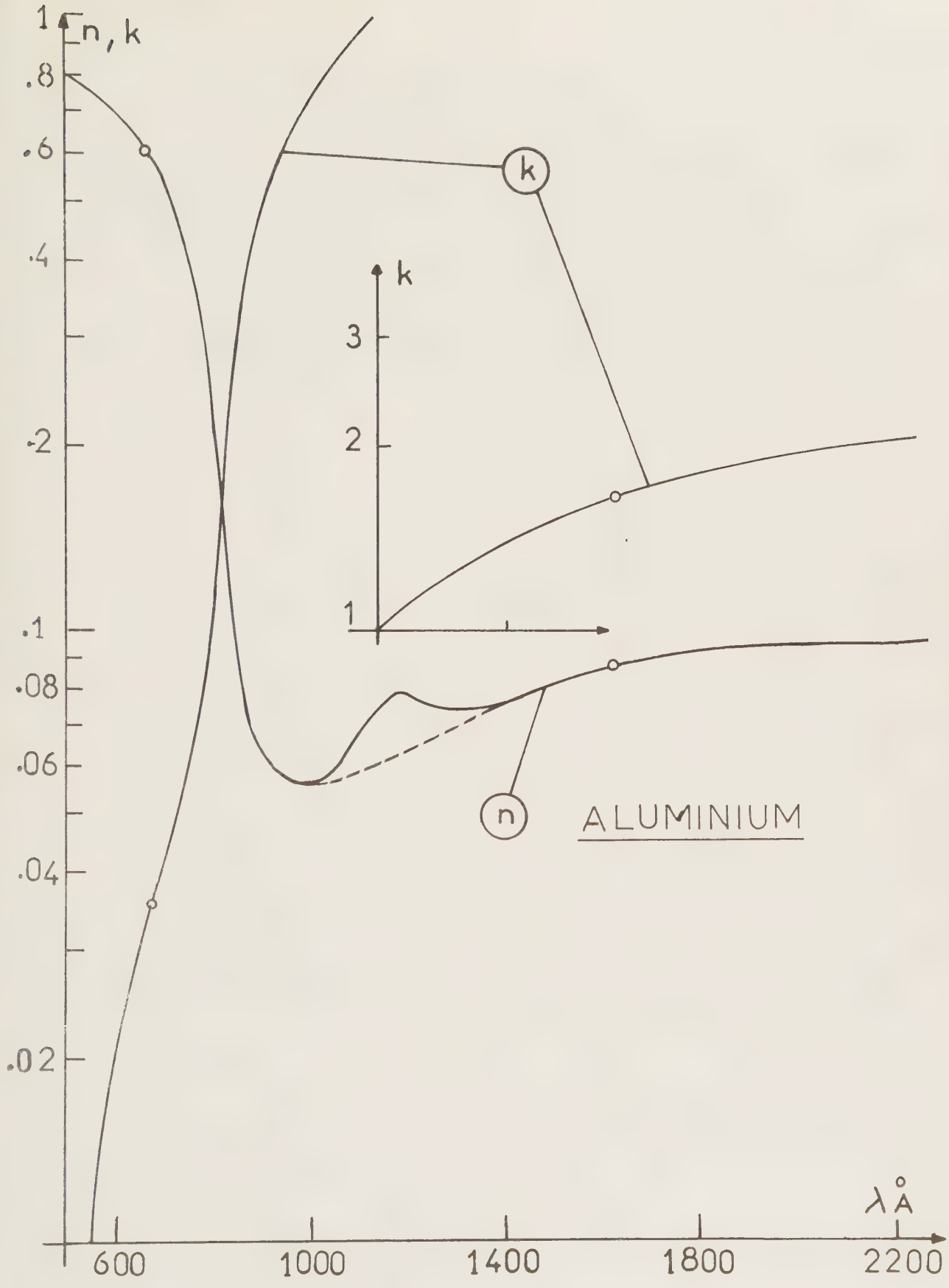

n, k
1
.8
.6
.4
.2
.1
.08
.06
.04
.02
k
n
k
3
2
1
ALUMINIUM
λ Å
600
1000
1400
1800
2200

FIG – 59

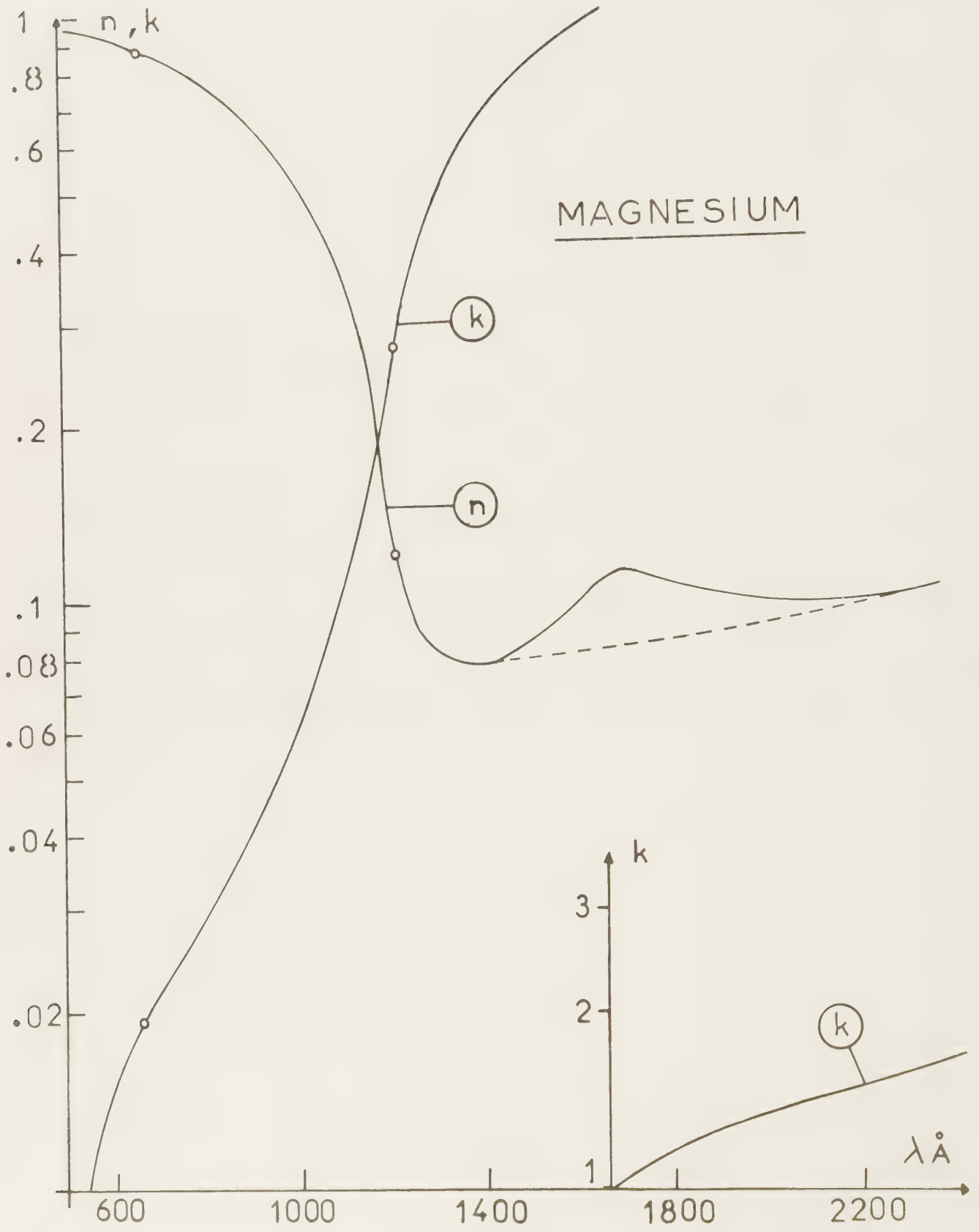

1
n, k
.8
.6
.4
.2
.1
.08
.06
.04
.02
MAGNESIUM
k
n
600
1000
1400
1800
2200
k
3
2
1
k
λÅ

FIG – 60

III.1.3 - Constantes diélectriques de l'Al et de Mg.

Les principales relations exprimant l'interaction onde - matière utilisées sont données en *Annexe IV*. Nous avons indiqué en particulier les formes différentes que prend l'expression de la constante diélectrique du milieu suivant le modèle théorique choisi pour représenter le solide. La constante diélectrique complexe $\hat{\varepsilon} = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ permettant d'analyser la réponse des électrons du solide au champ extérieur (considéré comme une perturbation) nous pourrons en comparant les valeurs expérimentales obtenues aux prévisions théoriques, tirer divers renseignements sur la structure des couches examinées et sur l'interaction photons électrons dans le solide.

Dans notre domaine de mesures (longueur d'onde grande par rapport aux distances interatomiques) et comme il s'agit de couches minces (le milieu est supposé parfaitement isotrope), nous pourrons comparer nos résultats aux mesures des pertes caractéristiques d'énergie des électrons |91|. En effet dans les conditions énoncées ci-dessus, la constante diélectrique transverse ($\varepsilon_\perp$) (mise en oeuvre par le rayonnement) et la constante diélectrique longitudinale ($\varepsilon_{//}$) (évaluée par des mesures utilisant des électrons rapides) peuvent être considérées comme égales. Les tableaux ci-dessous rassemblent pour l'aluminium (Tableau III-4) et pour le magnésium (Tableau III-5) les valeurs numériques des parties réelles et imaginaires des constantes diélectriques que nous avons calculées par l'intermédiaire des constantes optiques n_2 et k_2 ; elles représentent les propriétés macroscopiques du milieu dans le cadre de la théorie de Maxwell (*A.IV*). Nous confronterons ces valeurs numériques aux indications fournies par la théorie de l'électron libre d'une part et par la théorie de la particule indépendante, dans un potentiel périodique d'autre part.

Aluminium.

Dans le cadre de la *théorie de l'électron libre*, la fréquence de plasma théorique de l'aluminium est (*A.IV,35*) $\omega_p = 24{,}85\ 10^{15}$ rad s^{-1}, elle correspond à une énergie de plasmon $\hbar\omega_p$ de 15,8 eV ou à une longueur d'onde critique de 780 Å.

Le deuxième paramètre nécessaire pour décrire les propriétés physiques du métal examiné est le temps de relaxation τ représentant l'a-

TABLEAU III-4

CONSTANTES DIELECTRIQUES DE L'ALUMINIUM

LAMBDA	ENERGIE	EPSILON1	EPSILON2	PERTE
2500.	4.958	-4.032	.361	.022
2400.	5.165	-4.036	.361	.022
2300.	5.390	-4.039	.366	.022
2200.	5.635	-4.047	.366	.022
2100.	5.903	-4.080	.372	.022
2050.	6.047	-4.007	.372	.023
2000.	6.198	-3.911	.372	.024
1950.	6.357	-3.789	.370	.025
1900.	6.524	-3.654	.359	.026
1850.	6.701	-3.506	.352	.028
1800.	6.887	-3.351	.340	.030
1750.	7.084	-3.184	.328	.032
1700.	7.292	-3.016	.313	.034
1650.	7.513	-2.841	.297	.036
1600.	7.748	-2.659	.277	.038
1550.	7.998	-2.476	.264	.042
1500.	8.264	-2.294	.245	.046
1450.	8.549	-2.108	.226	.050
1400.	8.855	-1.923	.208	.055
1350.	9.182	-1.736	.200	.065
1300.	9.536	-1.557	.185	.075
1280.	9.685	-1.485	.180	.080
1260.	9.838	-1.413	.176	.086
1240.	9.997	-1.342	.174	.095
1220.	10.161	-1.273	.171	.104
1200.	10.330	-1.206	.169	.114
1180.	10.505	-1.142	.169	.126

TABLEAU III-4

1160.	10.687	-1.083	.162	.135
1140.	10.874	-1.022	.150	.140
1120.	11.068	-.957	.139	.148
1100.	11.270	-.894	.128	.157
1080.	11.478	-.827	.116	.167
1060.	11.695	-.760	.106	.180
1040.	11.920	-.692	.098	.201
1020.	12.153	-.623	.091	.231
1000.	12.397	-.557	.083	.263
980.	12.650	-.492	.078	.316
960.	12.913	-.428	.074	.396
940.	13.188	-.366	.070	.506
920.	13.475	-.305	.066	.682
900.	13.774	-.245	.061	.967
880.	14.087	-.184	.058	1.553
870.	14.249	-.154	.056	2.085
860.	14.415	-.125	.055	2.948
850.	14.584	-.097	.052	4.291
840.	14.758	-.066	.052	7.360
830.	14.936	-.037	.052	12.590
820.	15.118	-.009	.052	18.347
810.	15.304	.017	.053	16.862
800.	15.496	.044	.055	11.004
780.	15.893	.093	.054	4.644
760.	16.311	.137	.050	2.350
740.	16.752	.183	.033	.965
700.	17.710	.264	.035	.493
680.	18.230	.302	.048	.516
660.	18.783	.350	.058	.461
640.	19.370	.397	.054	.337

TABLEAU III-4

620.	19.995	.437	.037	.192
600.	20.661	.482	.029	.124
580.	21.374	.511	.021	.082
560.	22.137	.543	.007	.024
540.	22.957	.571	.004	.013
520.	23.840	.609	.003	.008

TABLEAU III-5

CONSTANTES DIELECTRIQUES DU MAGNESIUM

LAMBDA	ENERGIE	EPSILON1	EPSILON2	PERTE
2500.	4.958	-2.800	.301	.038
2400.	5.165	-2.636	.286	.040
2300.	5.390	-2.589	.299	.044
2200.	5.635	-2.347	.282	.050
2100.	5.903	-2.089	.289	.065
2000.	6.198	-1.836	.271	.078
1900.	6.524	-1.601	.269	.102
1800.	6.887	-1.327	.242	.133
1700.	7.292	-1.085	.238	.193
1650.	7.513	-1.000	.215	.205
1600.	7.748	-.900	.190	.225
1550.	7.998	-.792	.164	.251
1500.	8.264	-.678	.137	.286
1450.	8.549	-.563	.120	.363
1400.	8.855	-.453	.103	.475
1350.	9.182	-.344	.091	.717
1325.	9.356	-.291	.087	.942
1300.	9.536	-.240	.082	1.279
1275.	9.723	-.188	.075	1.830
1250.	9.917	-.136	.072	3.023
1225.	10.120	-.085	.066	5.688
1200.	10.330	-.033	.067	11.816
1195.	10.374	-.023	.067	13.201
1190.	10.417	-.013	.066	14.403
1185.	10.461	-.003	.065	15.150
1180.	10.505	.009	.061	15.879

TABLEAU III-5

1175.	10.550	.029	.070	11.993
1150.	10.780	.059	.081	8.017
1125.	11.019	.096	.080	5.114
1100.	11.270	.132	.076	3.258
1075.	11.532	.172	.072	2.061
1050.	11.806	.209	.068	1.408
1025.	12.094	.248	.065	.988
1000.	12.397	.280	.057	.702
975.	12.714	.324	.049	.456
950.	13.049	.361	.043	.327
925.	13.402	.409	.044	.264
900.	13.774	.435	.046	.241
850.	14.584	.508	.041	.158
800.	15.496	.566	.036	.112
750.	16.529	.633	.035	.087
700.	17.710	.673	.027	.061
650.	19.072	.741	.018	.034
600.	20.661	.783	.017	.028
550.	22.540	.828	.009	.013
500.	24.794	.866	.003	.004

mortissement du mouvement des électrons (par les impuretés, les défauts..); il est déterminé directement par l'expérience, on le suppose constant (*A.IV,17*) dans le domaine spectral allant de l'infra-rouge à l'ultraviolet lointain. Des mesures de conductivité en courant continu donnent pour des couches minces d'aluminium une valeur $\sigma_o = 1{,}55.10^{17}\ s^{-1}$ à laquelle correspond (*A.IV,20*) un temps de relaxation de 5.10^{-15} s.

Les valeurs théoriques

$$\varepsilon_1 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \tau^{-2}} \quad \text{et} \quad \varepsilon_2 = \frac{1}{\omega\tau} \cdot \frac{1}{\omega^2 + \tau^{-2}}$$

(*A.IV,24*) peuvent être comparées à nos valeurs expérimentales en tenant compte du fait que dans notre domaine d'étude $\omega\tau$ reste bien supérieur à 1. Nous pouvons d'après (*A.IV,25*) écrire que ε_1 est bien déterminé par $1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}$ et ε_2 par $\frac{1}{\omega^2}$.

Nous avons représenté sur la figure 61 les deux fonctions précédentes.

En trait plein ce sont les courbes théoriques calculées à partir des équations précédentes pour les valeurs $\hbar\omega_p = 15{,}3$ eV et $\tau = 1.10^{-15}$ s. correspondant pour la première à l'abscisse du point d'inflexion de la courbe du pouvoir réflecteur en fonction de l'énergie, (figure 46) et pour la seconde à la largeur à mi-hauteur de la fonction $\mathrm{Im}\frac{1}{\varepsilon}$ décrite ci-dessous.

ε_1 et ε_2 déduits (tableau III-4) de nos mesures |92| sont indiquées par des cercles (O). On constate que pour ε_1 l'accord est excellent entre ces valeurs et les valeurs théoriques, pour ε_2 par contre, la correspondance est moins bonne dans le domaine d'énergie inférieur à 10,5 eV comme l'indiquent également les résultats d'ARAKAWA |94| représentés par les croix (+) sur la figure 61. Les pics de ε_2 traduisant généralement une absorption due à des transitions interbandes, ARAKAWA attribue ce comportement de ε_2 à une transition de ce genre. Nous pouvons, à partir de travaux plus récents |66| |95| effectués sur l'aluminium en couche mince, affirmer que la variation de ε_2 dans ce domaine d'énergie est lié à une absorption par excitation du plasmon de surface. En effet, d'une part, le critère d'excitation (*A.IV,35*) $\hat{\varepsilon}(\omega) = -1$ est satisfait, d'autre

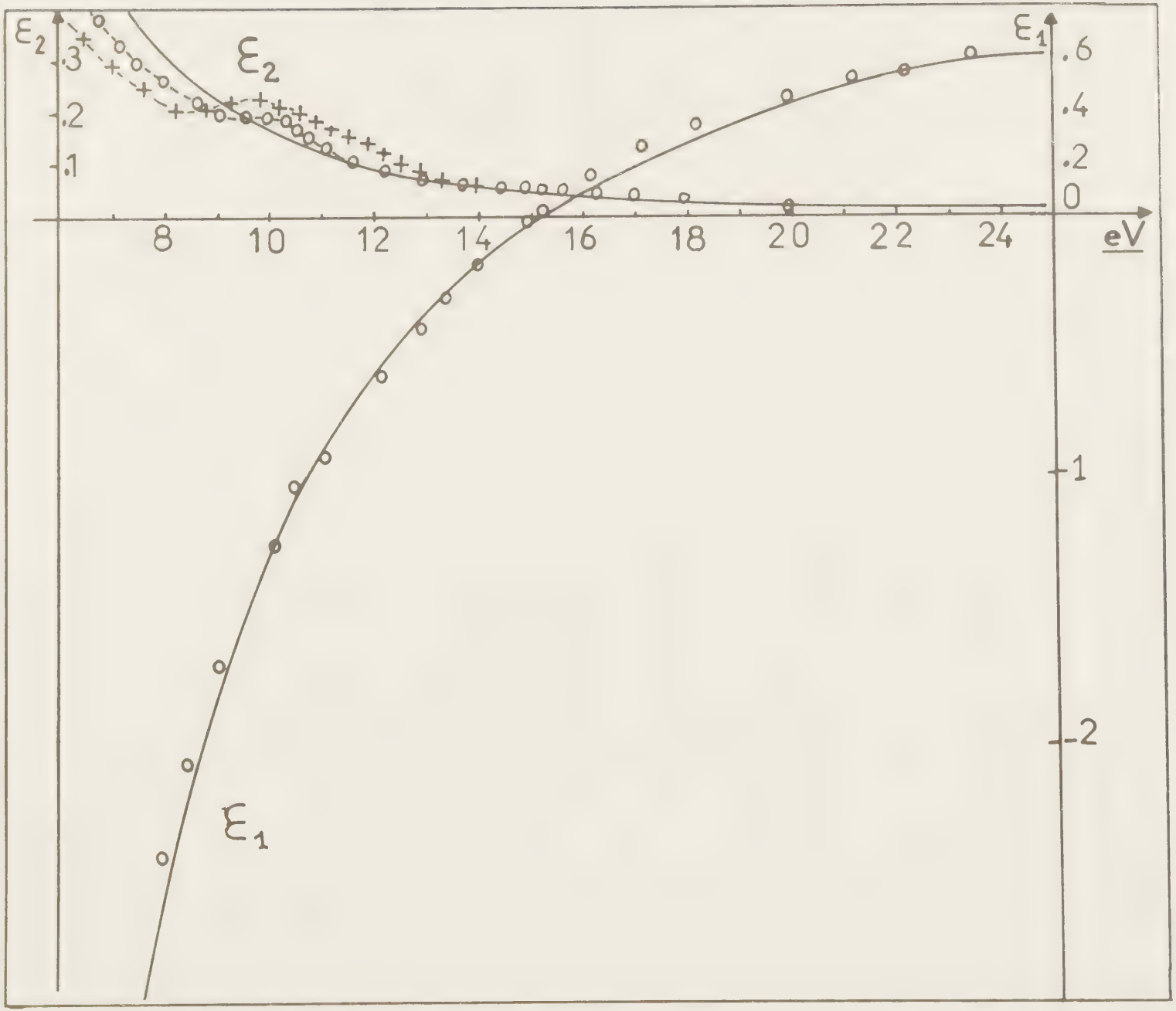


FIG - 61

part, des résultats que nous développerons dans le prochain paragraphe confirmeront cette conclusion |96|. Nous voyons également sur la figure 61 que la fréquence d'oscillation du plasmon de volume, obtenue à partir de $\varepsilon_1(\omega) = 0$ (*A.IV,30*), correspond à l'énergie $\hbar\omega_p$ de 15,3 ± 0,1 eV, valeur très proche de l'énergie de plasmon théorique évaluée ci-dessus à 15,8 eV.

La comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs théoriques du temps de relaxation τ, ne pouvant s'exprimer qu'à partir de l'expérience, nous devrions, dans le contexte de la théorie de Drude, avoir pour tout le domaine de longueurs d'onde une valeur constante de τ, comme l'exprime le rapport $\frac{1 - \varepsilon_1}{\omega\varepsilon_2} = \tau$ (*A.IV,24*) où l'on considère que $\omega\tau$ est très supérieur à 1 dans le domaine exploré. Nous avons représenté sur la figure 62 les valeurs de $1 - \varepsilon_1$ en fonction de $\omega\varepsilon_2$. (Cette représentation est parfois appelée diagramme d'Argand |97|). La distribution de nos résultats expérimentaux (O) autour de la droite de pente moyenne $\tau = 1.10^{-15}$ s. met en relief l'écart entre la théorie et l'expérience. Les variations de τ en fonction de λ se manifestent d'ailleurs dans tout le domaine spectral allant de l'UV à l'IR, comme le montre la figure 63 sur laquelle nous avons reporté les valeurs de τ mesurées par différents auteurs, entre les longueurs d'onde 500 Å et 20 µ |98|. La valeur τ_c déduite des mesures de conductivité en courant continu est indiquée par la ligne en traits discontinus.

La théorie de Drude est une théorie limite d'autant mieux vérifiable par l'expérience que le domaine étudié est situé vers les faibles énergies |99|. L'expression de la constante diélectrique a été modifiée par COHEN pour traduire l'image des électrons dans le potentiel périodique en tenant compte de la polarisabilité du "coeur" atomique et en attribuant aux électrons de conduction une masse effective m_a différente de m_o (*A.IV,43*). L'expression théorique de ε_1 s'écrit alors |94| $1 - \frac{\lambda^2}{\lambda_c^2} + 4\pi N\alpha$. Nous avons sur la figure 64 reporté les valeurs de ε_1 observées, en fonction de λ^2 et tracé la droite correspondant aux valeurs moyennes d'après (*A.IV,48*). L'ordonnée A du point d'intersection de cette droite avec l'axe ε_1 permet d'évaluer la polarisabilité α par l'écart entre A et 1 ; la pente de la droite (*A.IV,49*) permet d'avoir

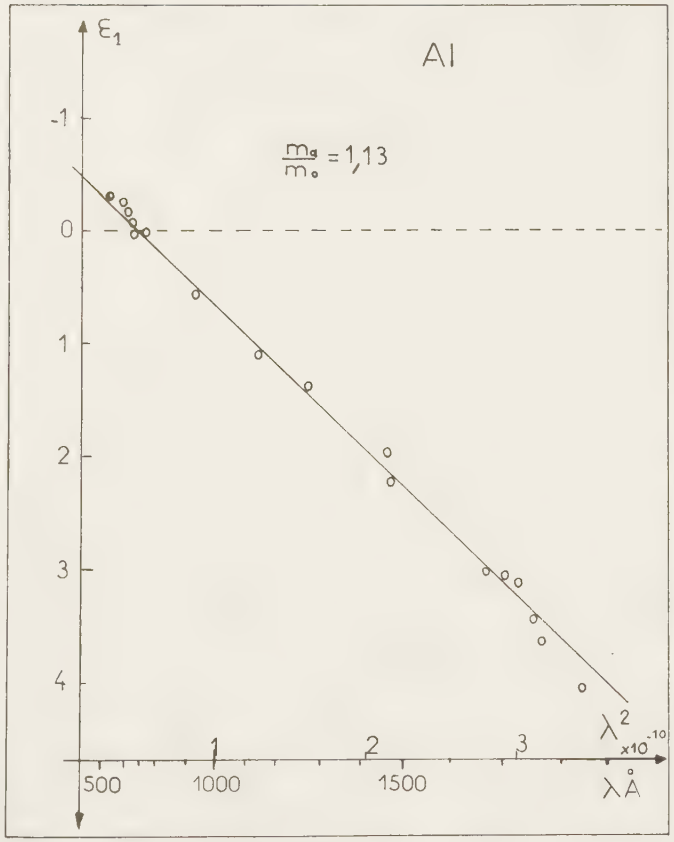


FIG – 64

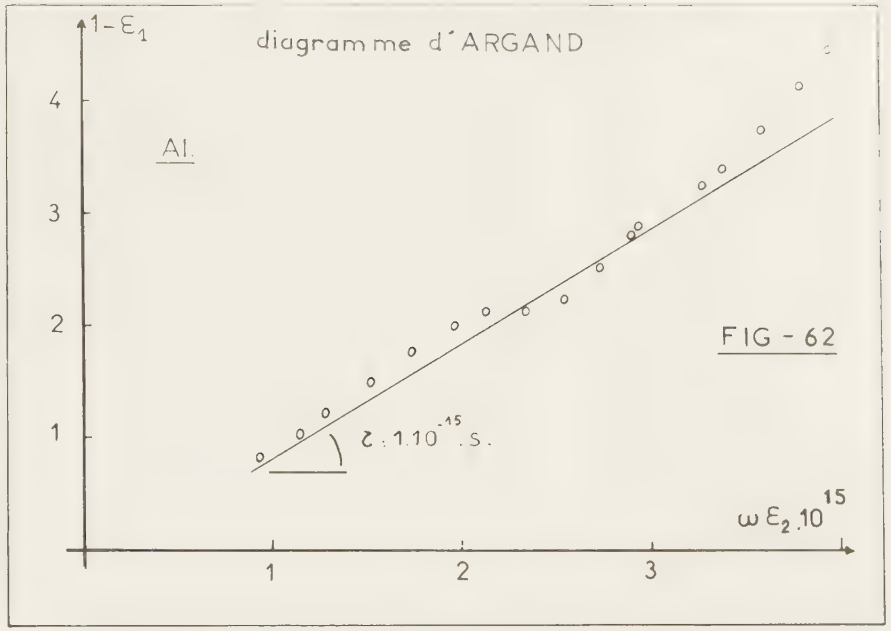


FIG - 62

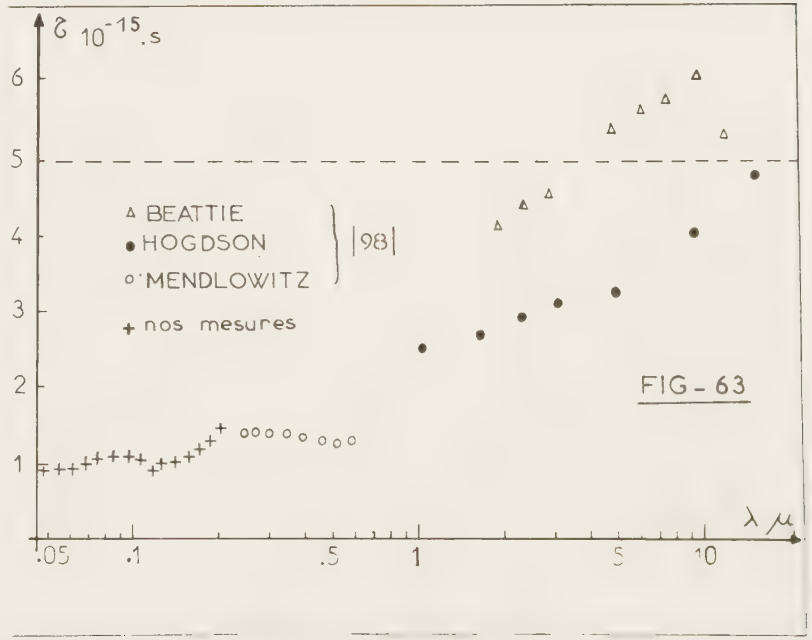


FIG - 63

la valeur de m_a effective. Nous voyons que, d'après cette représentation, la masse effective m_a de l'électron doit être prise pour l'aluminium égale à 1,13 m_o environ; elle exprime la valeur moyenne de la force d'oscillateur des électrons dans la bande de conduction.

En extrapolant les résultats obtenus à partir de mesures effectuées dans l'I.R., *EHRENREICH* |100| trouve que la fréquence théorique de plasma est 12,7 eV, que la constante de temps est égale à 5.10^{-15} s, et en supposant trois électrons libres, que la masse optique de l'électron est de 1,5 m_o. Ces valeurs assez différentes des valeurs obtenues précédemment peuvent s'expliquer si l'on modifie le modèle de l'électron libre en tenant compte des transitions que peuvent subir les électrons de valence du fait de l'existence du potentiel périodique dû au coeur ionique comme l'ont développé *PINES et BOHM* |83|, *NOZIERES et PINES* |84|, *EHRENREICH et PHILLIP* |89|.

Les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique complexe, d'après (*A.IV,46*), sont :

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_1^f(\omega) + \varepsilon_1^b(\omega)$$

$$\varepsilon_2 = \varepsilon_2^f(\omega) + \varepsilon_2^b(\omega)$$

où $\varepsilon_1^f(\omega)$ et $\varepsilon_2^f(\omega)$ peuvent être attribués à un comportement des électrons considérés comme libres mais avec une masse "optique" différente de leur masse au repos.
où $\varepsilon_1^b(\omega)$ et $\varepsilon_2^b(\omega)$ traduisent l'influence des transitions interbandes.

La fréquence théorique de plasma peut alors être déduite de

$$\varepsilon_1 = 1 - \frac{\omega_{pa}^2}{\omega^2} + \delta\varepsilon_1^b(\omega) = 0$$

$\delta\varepsilon_1^b(\omega)$ représentant le reste de la force d'oscillateur associée à la transition interbande située à 1,5 eV |89| |97| *EHRENREICH*, estimant $\delta\varepsilon_1^b(\omega)$ à - 0,3, montre que la fréquence d'oscillation de plasma est déplacée suivant la relation :

$$\omega_{effectif} = \frac{\omega_{théorique}}{1 + \delta\varepsilon_1^b(\omega)}$$

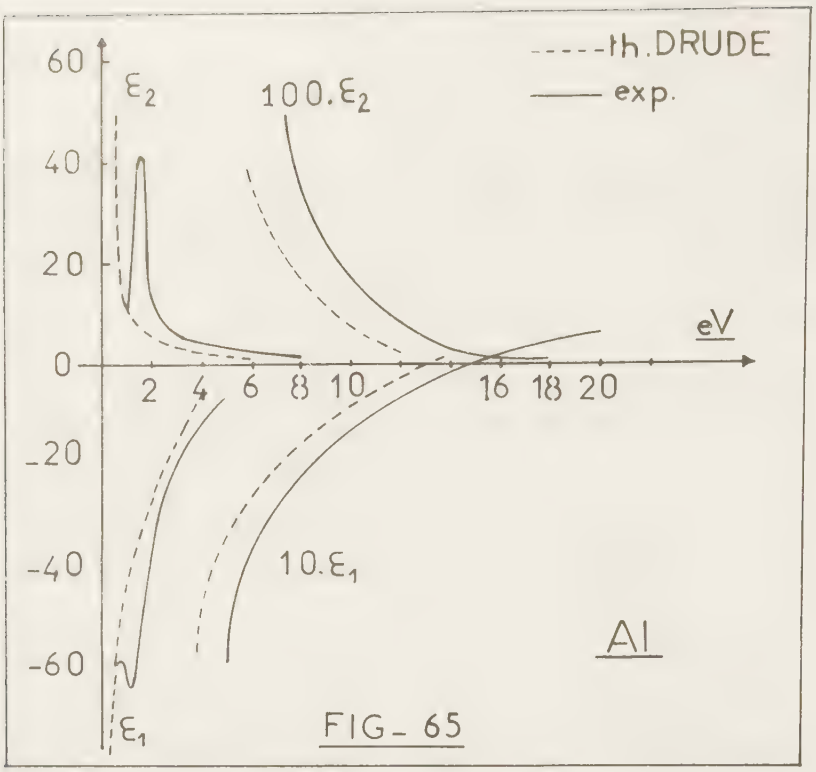

-----th. DRUDE
—— exp.
60
40
20
0
-20
-40
-60
ε_2
$100.\varepsilon_2$
$10.\varepsilon_1$
ε_1
eV
2 4 6 8 10 16 18 20
Al

FIG- 65

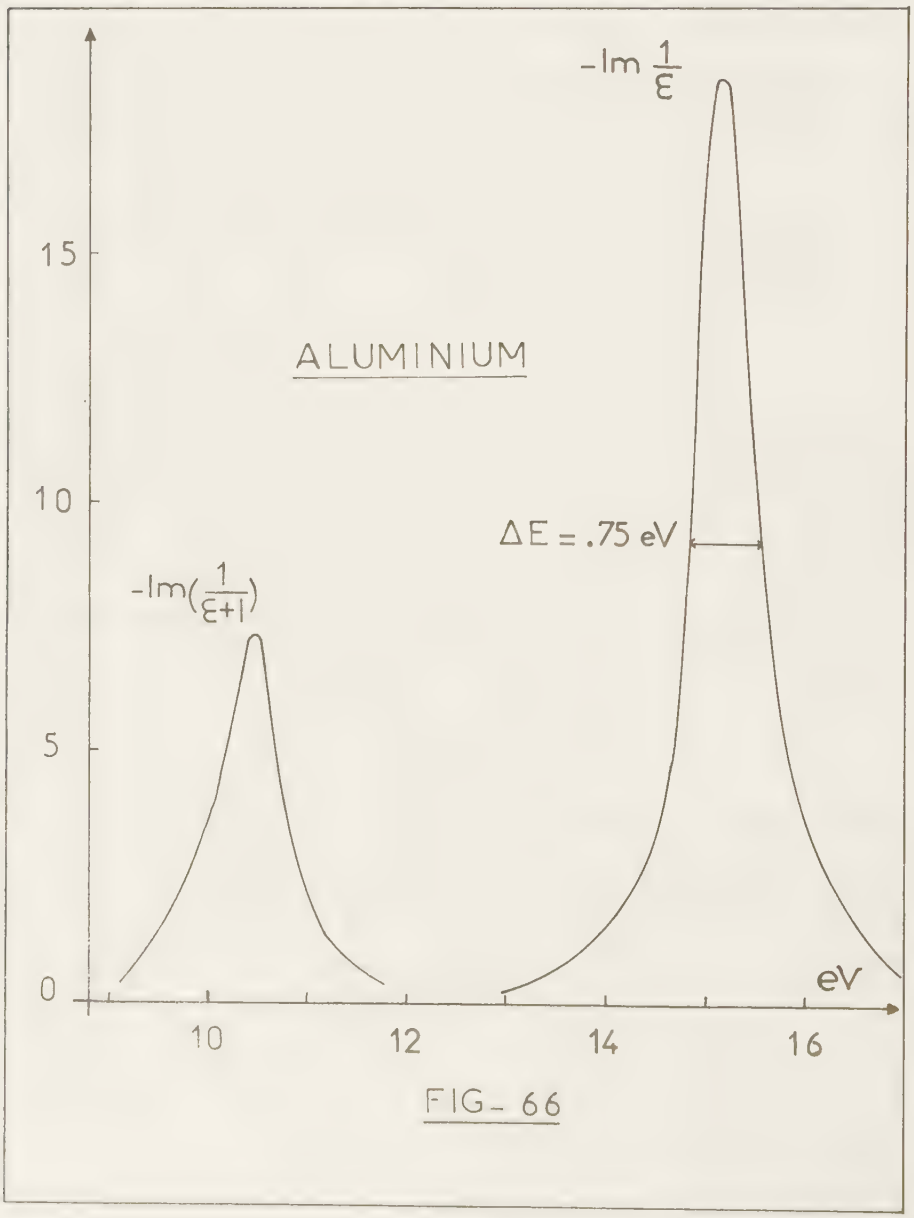

$-\mathrm{Im}\,\frac{1}{\varepsilon}$
ALUMINIUM
$\Delta E = .75$ eV
$-\mathrm{Im}\left(\frac{1}{\varepsilon+1}\right)$
15
10
5
0
eV
10 12 14 16

FIG- 66

En conséquence l'observation de la résonance de l'excitation collective des électrons est déplacée de 12,7 à 15,4 eV (fig. 65), correspondant à nos mesures (15,3 eV). Il résulte de ce calcul que la masse optique des électrons de valence associés à cette excitation est de $m_a = 1,15 \cdot m_o$ (valeur très proche de celle que nous avons obtenue par la représentation de COHEN).

Une étude d'HARRISON |101| basée sur la structure de bande de l'aluminium et une étude d'ARSCHROFF |102| confirment l'influence importante des transitions situées à 1,5 eV, due au parallélisme des bandes d'énergie Σ_3, Σ_1 |103|. Elles montrent en particulier (fig. 4, réf. 71) comment la transition à 1,5 eV agit sur le comportement de σ donc de ε_2.

Nous pouvons signaler que les pics des pertes caractéristiques d'énergie des électrons (15,4 et 10,8 eV) |104| |105| sont en bon accord avec les maxima des fonctions $-\mathrm{Im}\,\frac{1}{\varepsilon}$ (15,2 eV) et $-\mathrm{Im}\,\frac{1}{\varepsilon+1}$ (10,6eV) que nous avons tracées sur la figure 66. La largeur à mi-hauteur ΔE permet d'évaluer le temps de relaxation τ_c au voisinage de la résonance par $\Delta E = \frac{h}{\tau_c}$, ΔE étant de 0,75 eV il en résulte une valeur τ_c égale à 1.10^{-15} seconde, très voisine de la valeur de $1,1.10^{-15}$ seconde établie par MENDLOWITZ |98|.

Nous avons rassemblé dans le tableau (III-6) les principaux paramètres caractéristiques de l'aluminium.

Magnésium.

Le magnésium ayant été moins étudié que l'aluminium, les données expérimentales à l'extérieur du domaine exploré n'existent pas toujours. Dans l'I.R., seuls les résultats de LENHMAN et TREHERNE |106| sont susceptibles d'être utilisés, bien que ces expériences aient été réalisées sur métal massif. Du côté des fortes énergies nous nous référerons aux mesures de LAVILLA et MENDLOWITZ déjà cités au paragraphe précédent |73|. Le magnésium présentant un comportement analogue à celui de l'aluminium (haut pouvoir réflecteur, peu de transitions interbandes), la comparaison entre théorie et expérience peut être effectuée de la même façon.

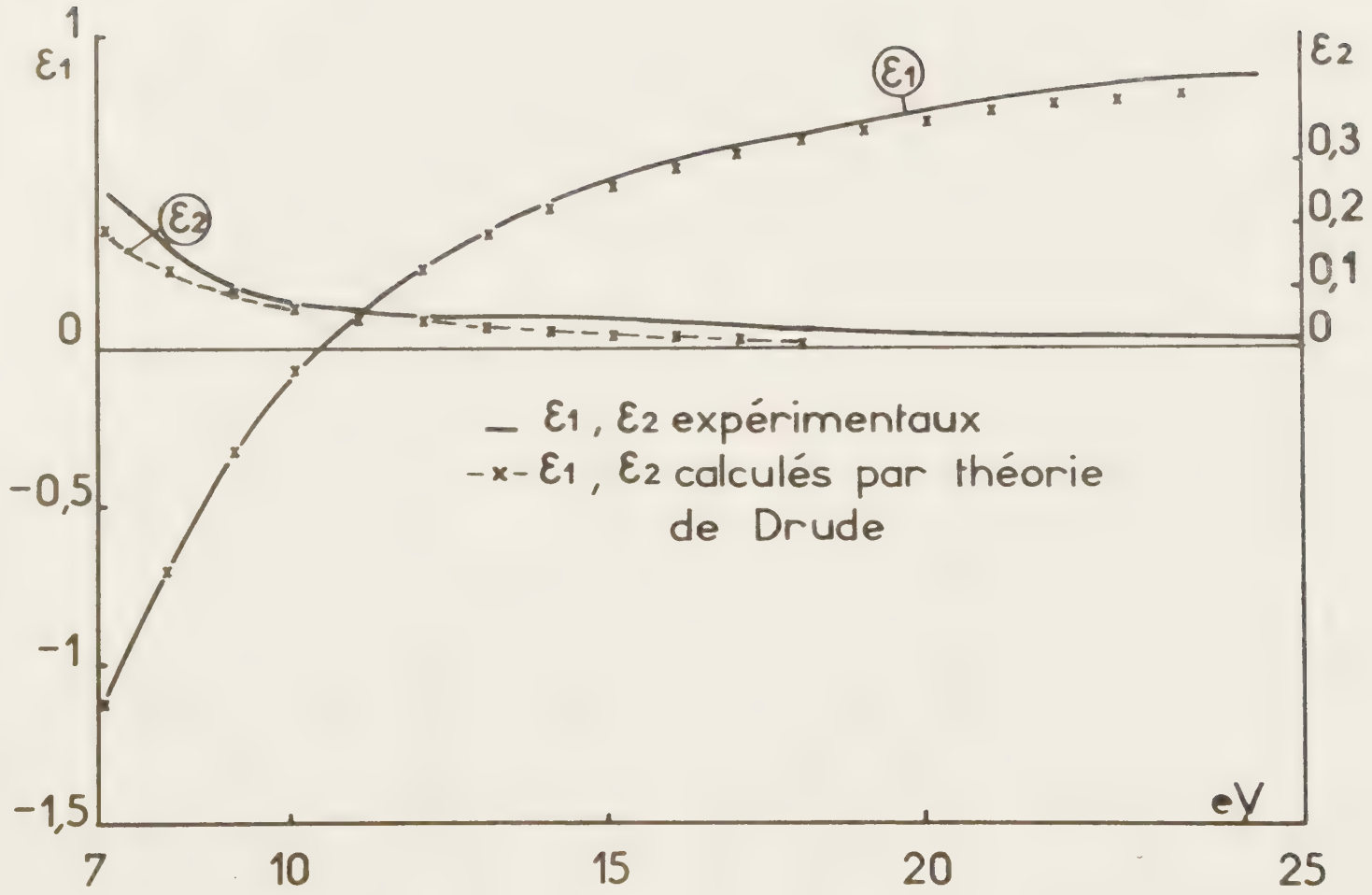

1
ε1
ε2
0,3
0,2
0,1
0
−0,5
−1
−1,5
ε1
ε2
— ε1 , ε2 expérimentaux
-x- ε1 , ε2 calculés par théorie
de Drude
eV
7
10
15
20
25

FIG - 67

TABLEAU III-6 - Paramètres de l'Aluminium

	Mesures optiques	Mesures par pertes d'énergie des électrons.	Nos mesures
λ_c : Å Longueur d'onde critique	830 Å |66|	835 Å |105|	815 Å
τ_c : s Temps de relaxation du gaz d'e^-	$1{,}1.10^{-15}$ s |21|	$1{,}1.10^{-15}$ s |98|	1.10^{-15} s
$\hbar\omega_p$: eV Plasmon de volume	15 eV |66|	15,4 eV |104|	15,3 eV
$\hbar\omega_s$: eV Plasmon de surface	10,2 eV |66|	10,8 eV |104|	10,6 eV
m_a/m_o Masse optique des e^- de conduction	1,15 |100|		1,13

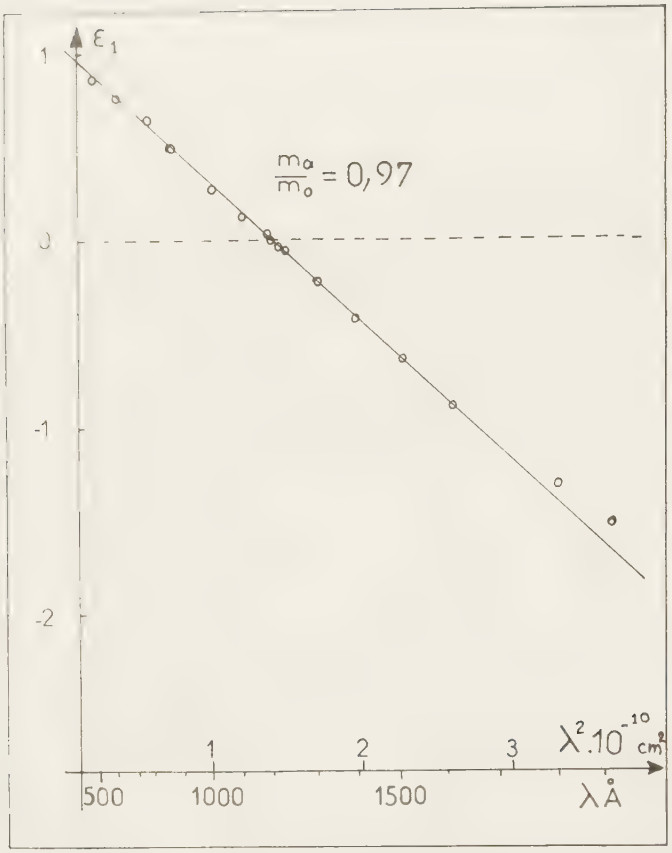


FIG – 68

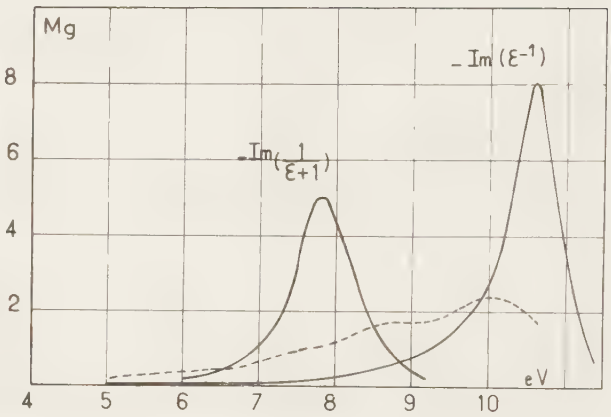


FIG 69 (a)

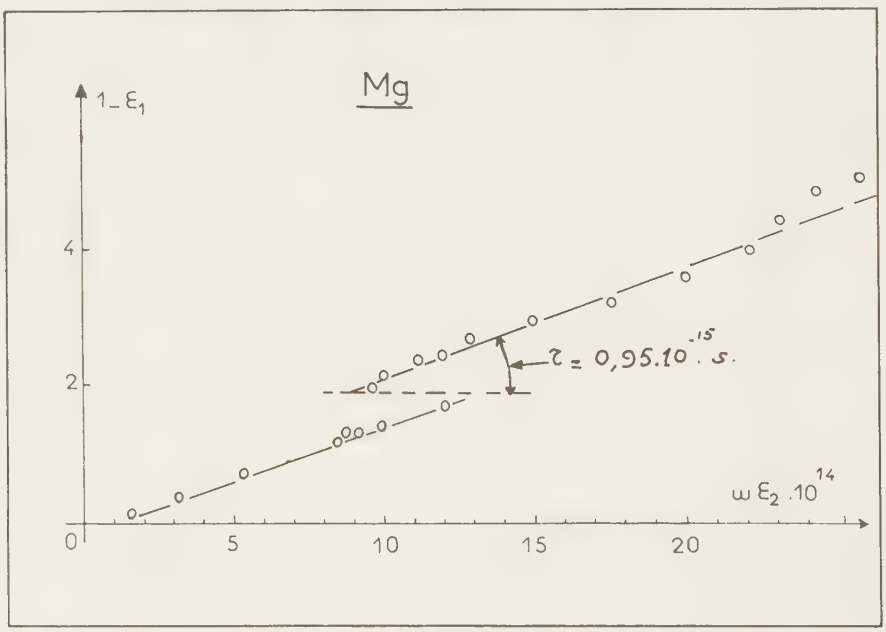


FIG – 69 (b)

Dans le cadre de la théorie de Drude, en considérant deux électrons libres par atome, une densité de 1,74 et une masse atomique de 24,3, nous obtenons (*A.IV*) :

λ_c = 1198 Å pour la longueur d'onde critique

$\hbar\omega_p$ = 10,6 eV pour l'énergie du plasmon de volume

Sur la figure 67, nous avons reporté les valeurs théoriques de ε_1 et ε_2 obtenues à partir de la relation (*A.IV,24*) et les valeurs expérimentales du Tableau III-5, le seul écart notable est pour ε_2 où l'absorption due au plasmon de surface à 7,4 eV s'ajoute à l'absorption de Drude.

Il serait intéressant de connaître comme dans le cas de l'aluminium l'importance et l'influence de transitions interbandes du côté des faibles énergies. *LENHMAN et TREHERNE* |106| donnent 0,40 eV pour les seuils d'absorption, *HARRISON* |101| indique des transitions à 0,17; 0,72; 0,84 eV mais signale que les pics sont beaucoup moins apparents et moins bien définis que dans le cas de l'aluminium, ce qui indiquerait du fait de l'éloignement et de la faible force d'oscillateur une action négligeable sur la fréquence apparente du plasma. Ceci signifie également que le magnésium suit la théorie de Drude dans un domaine de fréquence plus large que l'aluminium. La représentation de ε_1 en $f(\lambda^2)$ (fig. 68) confirme d'ailleurs cette hypothèse ; ε_1 étant représenté par $A - \frac{B}{\omega^2}$, la figure permet d'en déduire que $A \simeq 1$ et $\frac{B}{\omega^2} \simeq m_a = 0{,}97\ m_o$.

On voit sur la figure 69 (a) que les fonctions pertes $-\mathrm{Im}\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)$ et $-\mathrm{Im}\left(\frac{1}{\varepsilon+1}\right)$ permettent de situer le plasmon de volume à 10,5 eV (1198 Å) et celui de surface à 7,8 eV. La largeur à mi-hauteur ΔE de $-\mathrm{Im}\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)$ donne pour τ_c une valeur égale à $0{,}9.10^{-15}$ s. Le diagramme d'Argand du magnésium tracé sur la figure 69 (b) montre que τ_c expérimental conserve, si l'on ne tient pas compte de la zone d'influence du plasmon de surface, une valeur à peu près constante voisine de $0{,}95.10^{-15}$ s. La variation de τ_c pour l'aluminium étant plus sensible dans le même domaine de longueurs d'onde, cela vient confirmer le fait que la théorie de l'électron libre s'adapte dans un domaine plus large pour le magnésium que pour l'aluminium. Par contre, nous expliquerons dans le prochain paragraphe comment l'influence du plasmon de surface est plus sensible dans les mesures effectuées sur le magnésium.

Nous résumons dans le tableau III-7 les valeurs des principaux paramètres caractéristiques du magnésium.

En résumé, pour l'aluminium et le magnésium, les propriétés mises en relief par la constante diélectrique peuvent s'exprimer sous la forme indiquée par *POWELL* |107| où la séparation des contributions dues aux électrons libres (de masse effective m_a) et aux électrons liés peuvent s'écrire :

$$\varepsilon^f(\omega) = 1 - f_o \omega_p^2 / \omega^2 + i g_o \omega \qquad (1)$$

$$\varepsilon^b(\omega) = - \sum_{j=1}^{r} \frac{f_j \omega_p^2}{\omega^2 - \omega_j^2 + i g_j \omega} \qquad (2)$$

relations dans lesquelles :

$f_o = \frac{m}{m_a}$ est la force d'oscillateur de l'électron libre.

$g_o = \frac{1}{\tau_c}$ est l'inverse du temps de relaxation des électrons dans la bande de valence.

m_a est la masse effective.

l'indice r concerne la transition interbande de fréquence ω_j de force d'oscillateur f_j et de temps de relaxation $\frac{1}{g_i}$.

La détermination des différents paramètres de $\varepsilon(\omega)$ étant effectuée par ajustages successifs entre les valeurs expérimentales et les valeurs choisies pour $(r, f_o, g_o, f_i, \omega_j, g_i)$. En particulier l'excitation du plasmon de surface peut être incluse dans cette relation sous forme d'un terme d'absorption supplémentaire dans :

$$\varepsilon^b(\omega) = - \sum_{j=1}^{r} \frac{f_j \omega_p^2}{\omega^2 - \omega_j^2 + i g_j \omega}$$

POWELL |108| a indiqué que l'ajustage entre les valeurs théoriques et expérimentales était convenable lorsque r était pris égal à 2 pour la transition interbande et r = 3 pour l'oscillation de surface.

Comme le signalent différents auteurs |101| |103| le manque d'informations expérimentales dans un grand intervalle d'énergie et l'imprécision relative des données existantes, ne permet pas de vérifier actuellement les travaux et hypothèses théoriques basées sur les calculs de structure de bandes des solides.

TABLEAU III-7 - Paramètres du Magnésium

	Mesures Optiques	Mesures par pertes d'énergie des électrons.	Nos mesures
λ_c : Å Longueur d'onde critique	1200 Å |21|	1210 Å |98|	1195 Å
τ_c : s Temps de relaxation du gaz d'e^-	$1,0.10^{-15}$ s |21|	$1,1.10^{-15}$ s |98|	$0,95.10^{-15}$ s
$\hbar\omega_p$: eV Plasmon de volume	10,5 eV |71|	10,5 eV |104|	10,5 eV
$\hbar\omega_s$: eV Plasmon de surface	7,5 eV	7 eV	7,8 eV
m_a/m_o Masse optique des e^- de conduction			0,97

III.2 - SURFACES RUGUEUSES.

Nous avons donné en *Annexe V* les principales relations qui permettent de tenir compte des défauts superficiels d'une surface réfléchissante quand les aspérités sont petites par rapport à la longueur d'onde et quand le milieu observé présente les caractères d'un gaz d'électrons libres comme l'aluminium et le magnésium que nous étudions.

Nous avons vu que pour un échantillon rugueux, nous devions tenir compte d'un terme de diffusion ΔR_1 (*A.V,8*) et d'un terme ΔR_2 (*A.V,25*) décrivant l'interaction entre les champs incidents et les ondes de surfaces modulées par les aspérités superficielles. Si l'influence du premier phénomène (grandeur croissante quand la longueur d'onde d'observation décroît) se manifeste dans tout le domaine spectral, par contre la seconde interaction se développe dans un domaine restreint autour de la longueur d'onde de résonance pour laquelle ΔR_2 est maximum.

Un programme de calcul indiqué en *Annexe VI* permet d'évaluer ΔR_1 en fonction de la longueur d'onde de mesure λ et de la rugosité σ si la valeur R_o du pouvoir réflecteur d'une surface parfaitement plane du matériau est connue (le "pas" des aspérités étant petit par rapport à la longueur d'onde il n'intervient pas en première approximation).

Un second programme de calcul *Annexe VII* nous donne la possibilité de déterminer ΔR_2 en fonction de la longueur d'onde de mesure si l'on connait :

- *la fréquence du plasmon de volume,*
- *la fréquence de plasmon théorique (A.V,22),*
- *la rugosité* σ et la *distance d'autocorrélation* a qui caractérisent les défauts superficiels.

Ces deux programmes ont été établis pour des valeurs de σ variant de 1 en 1 Å dans le domaine compris entre 1 et 50 Å et pour des valeurs de a variant de 10 en 10 Å entre 130 Å et 500 Å. Les valeurs 50 Å et 500 Å correspondent aux limites d'utilisation des relations donnant ΔR_1 et ΔR_2 sans qu'il soit nécessaire d'apporter de corrections tenant compte des dimensions relativement grandes que présenteraient les défauts pour des valeurs σ et a supérieures à ces limites.

L'utilisation pratique des équations *A.V,8 et A.V,25*, nécessitant la connaissance du facteur de réflexion R_o d'une surface parfaitement plane, nous indiquons comment nous sommes parvenus à obtenir cette valeur avec une précision suffisante pour la suite de notre travail.

Pour l'utilisation pratique des tables numériques dressées à partir du programme de l'*Annexe VII*, la position du maximum de ΔR_2 détermine la longueur d'autocorrélation a des aspérités. Par contre, pour évaluer la rugosité σ, nous procéderons par "tâtonnements" entre valeurs théoriques et expérimentales.

Résultats expérimentaux.

1) Aluminium.

Sur la figure 70, nous avons reporté les valeurs du facteur de réflexion R_2 de couches minces d'aluminium déposées sur disques de pyrex polis. Nous pouvons, en attribuant le creux de réflexion à l'excitation du plasmon de surface de l'aluminium (observé au voisinage de 1200 Å), tracer la courbe R_1 correspondant au facteur de réflexion d'une couche d'aluminium dont le plasmon de surface ne serait pas excité. La partie de la courbe R_1 comprise entre les points de R_2 d'abscisses 1000 Å et 1450 Å, est assimilable à la droite reliant ces 2 points. La différence entre les ordonnées de R_1 et R_2 indique pour chaque longueur d'onde l'influence de l'excitation du plasmon de surface et permet d'évaluer le maximum de la quantité ΔR_2 . D'après la figure 70, la longueur d'onde pour laquelle ΔR_2 peut être considéré comme maximum est comprise entre 1180 et 1240 Å. Ces valeurs limites impliquent que a est compris entre 140 Å et 320 Å, σ variant de 2 à 8 Å (2 Å à 140 Å et 8 Å à 320 Å), comme le montrent les courbes en pointillés obtenues en calculant (d'après le programme de l'*annexe VII*) ΔR_2 pour les deux couples de valeurs σ et a. L'influence de la lumière diffusée calculée pour la plus grande valeur de σ (8 Å) est représentée par la différence entre les ordonnées des courbes R_o et R_1. Pour la longueur d'onde de 1000 Å, cette influence est de 0,6 %, soit une valeur comparable à la précision de nos mesures. R_o ainsi obtenu peut donc être considéré comme représentatif d'une couche plane du matériau étudié.

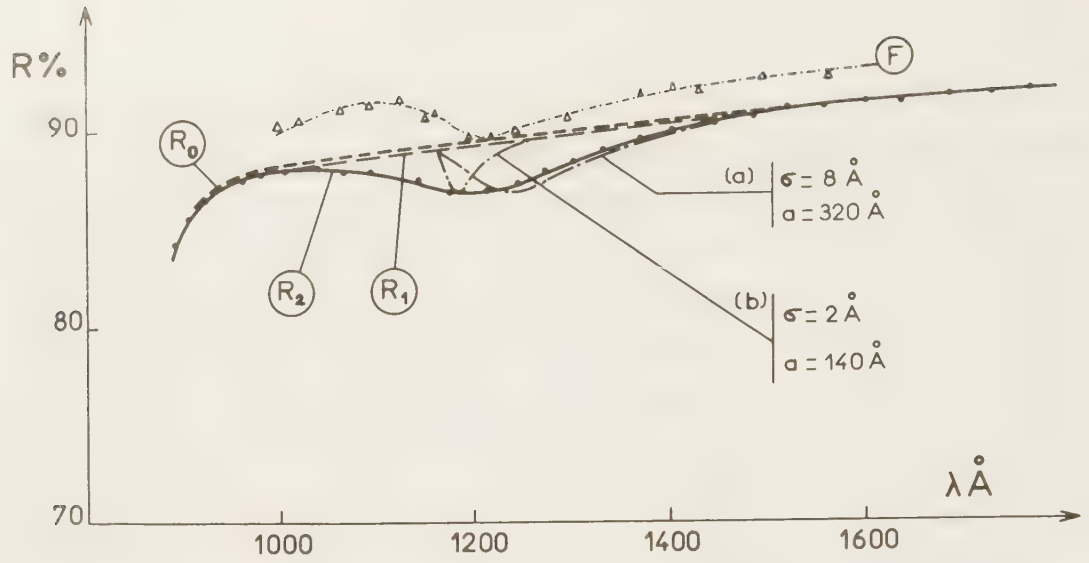


FIG - 70

Al

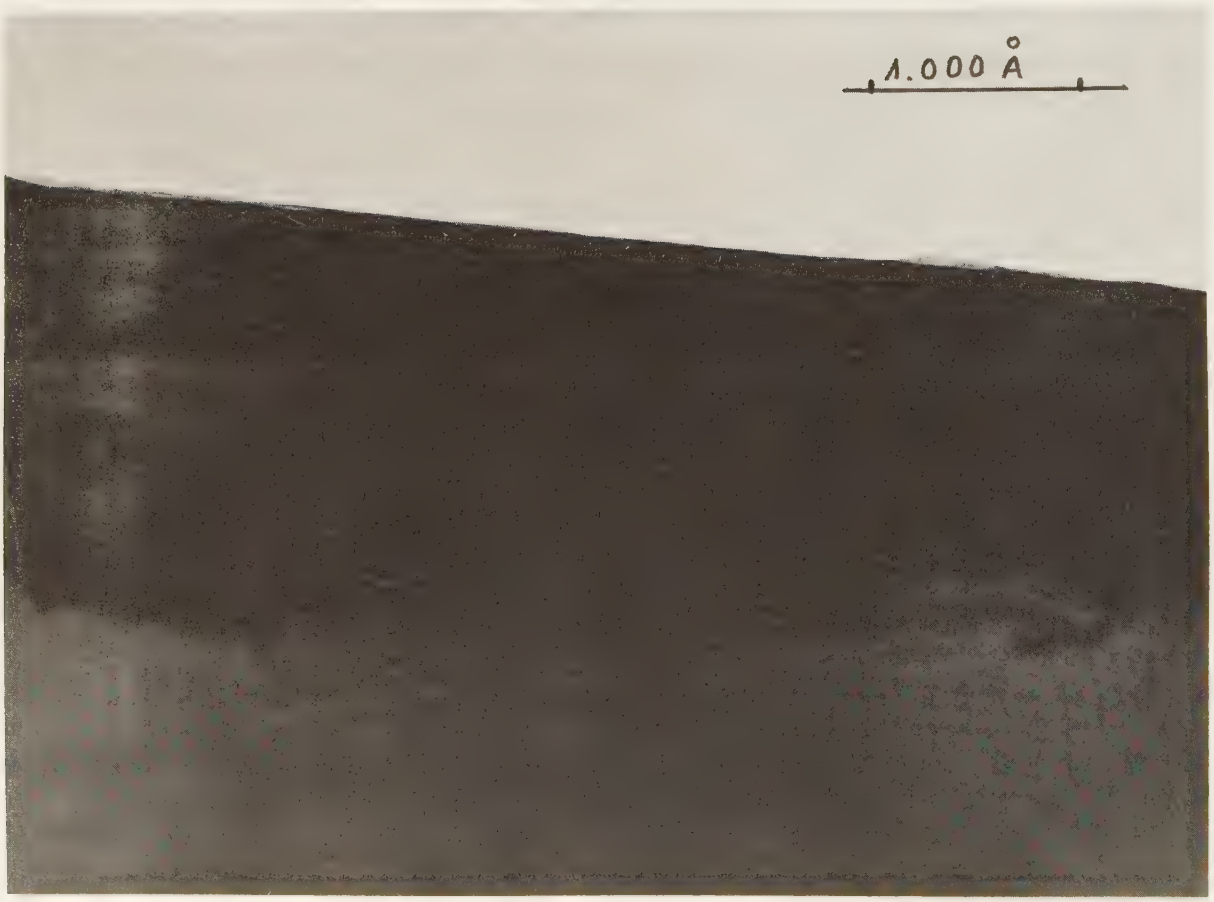


FIG_71

Nous prendrons, dans la suite de ce travail ces valeurs R_o comme point de départ des évaluations théoriques, en supposant que d'une couche à l'autre les qualités optiques des dépôts sont très voisines (hypothèse que nous avons vérifiée en réalisant les échantillons d'aluminium dans des conditions expérimentales aussi semblables que possible). La photo 71 montre l'aspect superficiel de couches minces d'aluminium observées au microscope électronique suivant la technique décrite dans le chapitre précédent. Bien que les défauts superficiels soient apparents, la définition de ces défauts sur le cliché n'est pas suffisante pour que σ et a puissent être évalués "géométriquement" et comparés aux valeurs précédemment établies.

2) Magnésium.

Nous avons reproduit sur la figure 72, courbe (a), les valeurs du pouvoir réflecteur de couches minces de magnésium correspondant à celles de la figure 47 (a). En procédant comme nous l'avons fait pour l'aluminium, c'est-à-dire, qu'après avoir tracé la courbe R_1 correspondant à une couche mince de Mg, dont le plasmon de surface ne serait pas excité, nous avons calculé les valeurs ΔR_2 (courbes en pointillés sur la figure 72), permettant d'approcher au mieux les valeurs expérimentales. Nous en déduisons que la longueur d'autocorrélation des défauts est $a = 350$ Å et que la rugosité des dépôts est $\sigma = 10$ Å. En tenant compte de ces dernières valeurs, nous pouvons à partir de la courbe R_1 établir les valeurs R_o du facteur de réflexion d'une couche parfaitement plane. L'aspect superficiel d'une couche mince de Mg de 1200 Å d'épaisseur déposée sur une plaquette d'or est donné sur la figure 73. D'après l'échelle de cette figure, on peut voir que le pas des défauts est très voisin de la valeur $a = 350$ Å obtenue ci-dessus, par contre la rugosité ne peut être déterminée avec suffisamment de précision pour confirmer la valeur $\sigma = 10$ Å donnée par le calcul.

Les deux études précédentes concernent les dépôts réalisés dans le dispositif sans fenêtre. Comme nous le voyons sur la figure 72, la courbe (b) relative aux valeurs de R_2 mesurées dans l'enceinte munie de fenêtres de LiF indique que la qualité des dépôts observés dans cette enceinte est moins bonne dans le domaine voisin de la

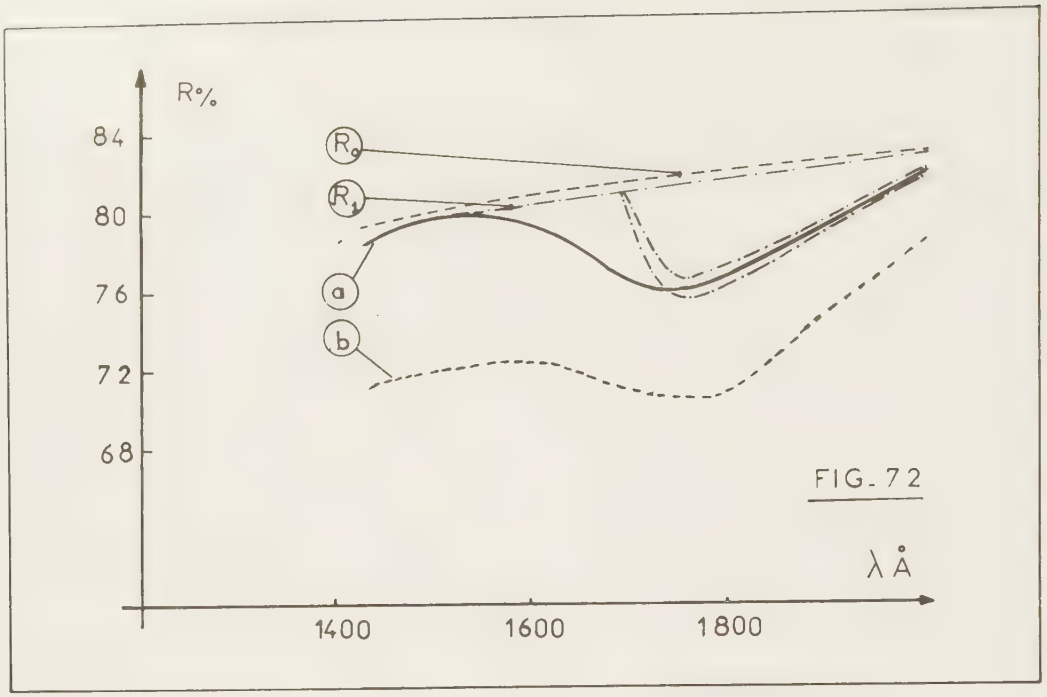


FIG_72

Mg

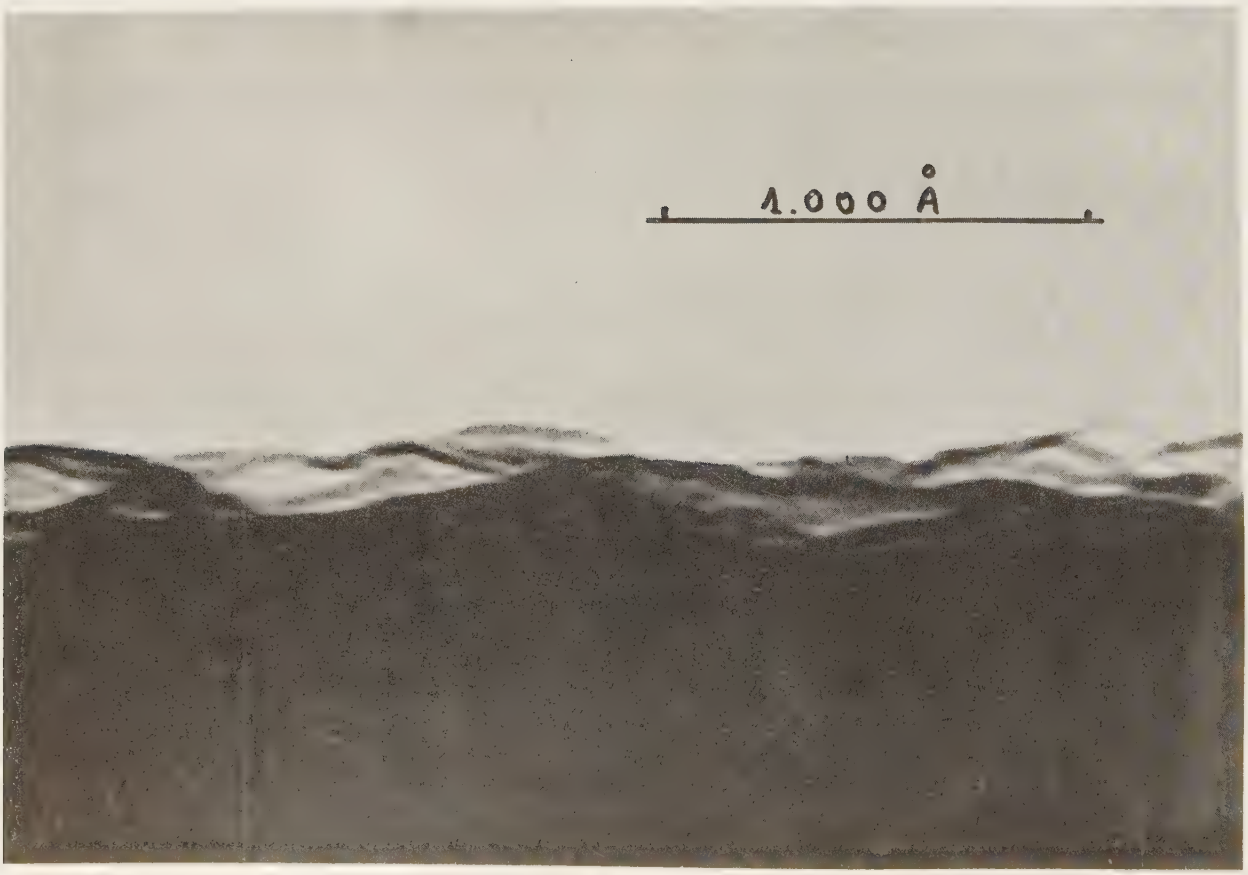


FIG_73

longueur d'onde de résonance du plasmon de surface. Pourtant les conditions de vide et les vitesses d'évaporation sont pratiquement identiques dans les deux dispositifs. Nous pensons que l'écart observé est dû à une modification de l'état de surface du porte échantillon en pyrex. En effet, dans l'enceinte munie de fenêtres, les "substrats" en pyrex sont en vue directe du dispositif de pompage et baignent sans écran protecteur dans l'atmosphère résiduelle ; par contre, dans l'enceinte sans fenêtre, les disques de pyrex devant supporter les dépôts sont stockés dans des étagères métalliques (formant cage de Faraday) situées loin des électrodes d'amorçage des pompes. Ainsi les décharges électriques qui s'établissent lors de l'amorçage des pompes ioniques provoqueraient par chocs ou "sputtering" une dégradation des surfaces destinées à recevoir les couches minces à étudier. Cette hypothèse est justifiée par les courbes de la figure 74 représentant les valeurs de R en fonction de la longueur d'onde. Ces valeurs ont été obtenues pour des couches d'aluminium de 1000 Å déposées sur des supports en pyrex soumis avant évaporation de l'aluminium à une décharge d'une intensité égale à 3 mA sous une tension de 3000 volts, l'entretien de la décharge ionique ayant duré 1 heure pour l'échantillon (1) et 2 heures pour l'échantillon (2).

Si l'on compare maintenant les rugosités de couches d'Al et de Mg réalisées dans des conditions identiques sur des supports identiques, on constate que le magnésium donne des rugosités plus élevées que l'aluminium (Fig. 70 (a) et 72 (a), cliché (71 et 73)). Cette observation peut être jointe aux résultats de JOHNSTON |120| et à ceux de BENNETT |121| relatifs à des mesures de lumière diffusée par des dépôts d'or et d'aluminium d'une part et par une comparaison entre des dépôts d'argent et d'aluminium d'autre part. Ces expériences indiquent que chaque matériau se condense de façon différente et fournit des dépôts de rugosités différentes. En toute rigueur on doit considérer que les défauts superficiels de couches minces résultent d'une combinaison entre les défauts du support et ceux propres au matériau évaporé. Nous pouvons cependant avoir une idée des défauts intrinsèques de l'aluminium en étudiant les résultats de FEUERBACHER |66| reproduits sur la figure 70 (F). Ces valeurs sont relatives à des couches d'aluminium réalisées sur pyrex poli à la flamme, ce polissage supplémentaire ayant pour effet de fondre les aspérités (dues au grain

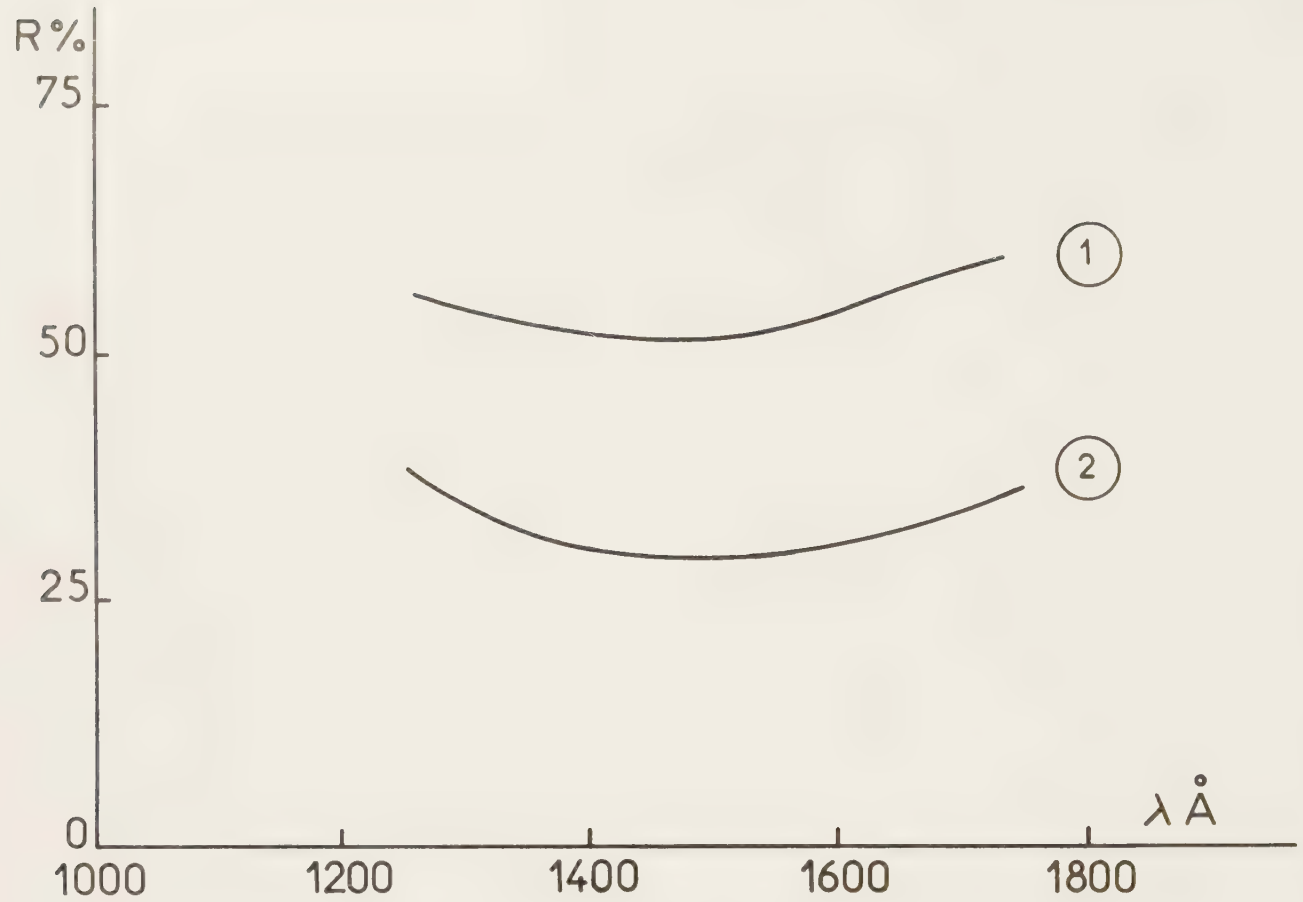

R%
75
50
25
0
1000
1200
1400
1600
1800
λ Å
1
2

FIG_ 74

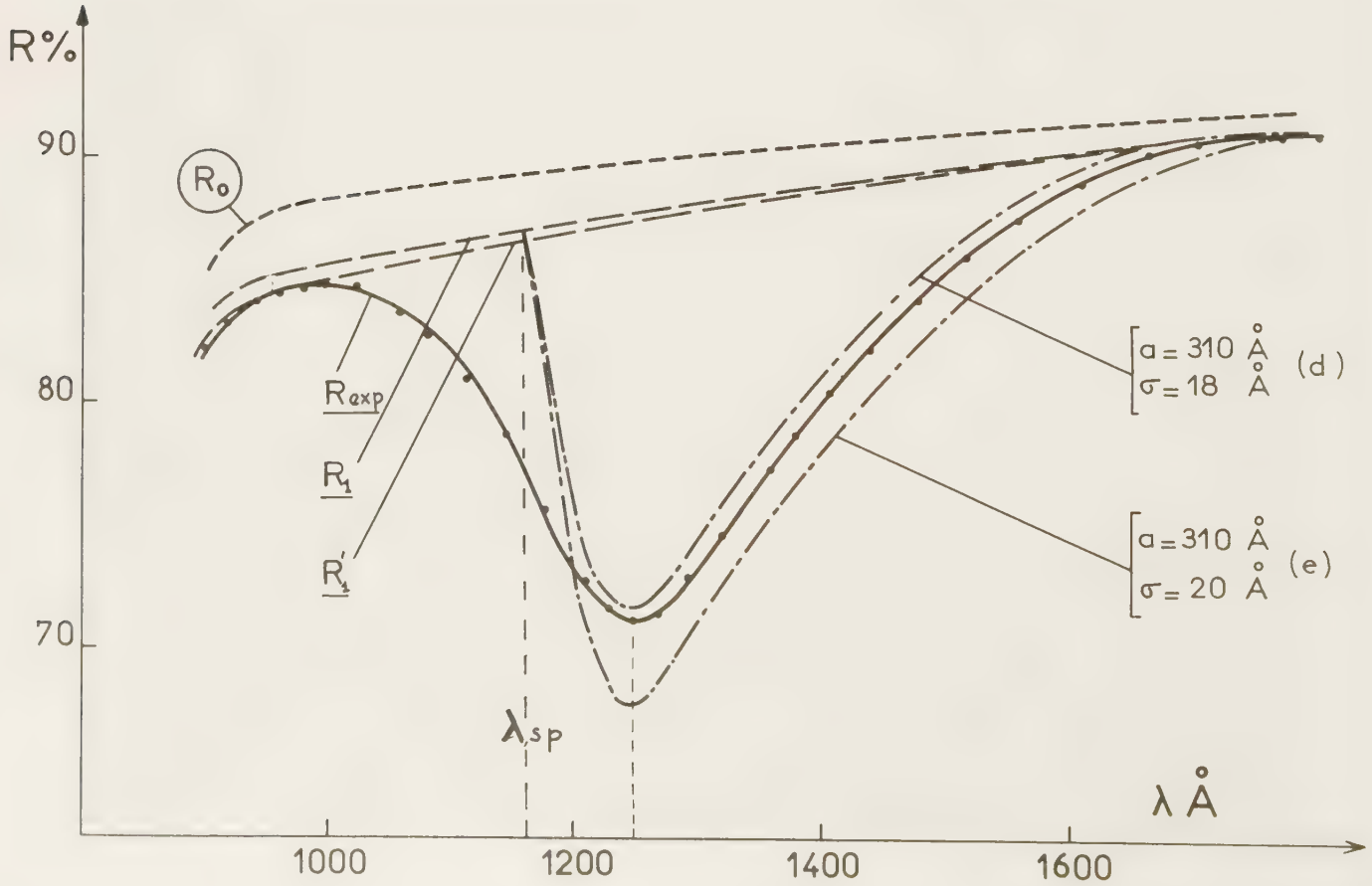

R%
90
80
70
R₀
R exp
R₁
R'₁
λ SP
a = 310 Å
σ = 18 Å
(d)
a = 310 Å
σ = 20 Å
(e)
1000
1200
1400
1600
λ Å

FIG- 75

d'émeri utilisé pour le polissage mécanique); la position du minimum de réflexion indique une longueur d'autocorrélation de 310 Å environ et une rugosité de l'ordre de 4 Å. Etant donné que hors du domaine de résonance entre les ondes de surface et l'onde incidente les valeurs R tendent à rejoindre nos valeurs R_o, la rugosité des couches qui favorise la mise en évidence du plasmon de surface peut être attribuée (pour les résultats de Feuerbacher) aux déformations propres de la couche d'aluminium (cristallisation, condensation).

3) Couches minces d'aluminium déposées sur des surfaces de forte rugosité.

Les qualités de certains appareils d'optique nécessitent l'utilisation de couches superposées (filtres, polariseurs, ...) ou de dépôts réfléchissants sur des surfaces imparfaitement planes (réseaux, cristaux clivés, ...).

Notre étude a porté sur l'examen des propriétés optiques de couches d'aluminium déposées sur des surfaces rugueuses préparées selon le procédé utilisé par *BENNETT* |122|. Celui-ci consiste en l'évaporation préalable d'une couche de CaF_2 présentant des défauts superficiels que l'on peut considérer comme périodiques. D'autres diélectriques possédant la propriété de fournir des surfaces rugueuses d'aspect différent de celui que donne CaF_2, nous avons évalué les paramètres σ et a de différentes couches d'aluminium de rugosité induite par différentes couches de diélectriques (MgF_2, LiF, CaF_2).

La figure 75 indique la méthode pratique suivie pour évaluer la rugosité σ et la distance d'autocorrélation a caractérisant l'aspect superficiel d'une couche d'aluminium de 900 Å d'épaisseur déposée sur une couche de fluorure de magnésium de 500 Å d'épaisseur dont le pouvoir réflecteur en fonction de la longueur d'onde est donné par la courbe R_2. La courbe R_o représentant le facteur de réflexion d'une couche plane d'aluminium, nous avons évalué pour différentes valeurs de σ la quantité de lumière diffusée ΔR_1 et tracé les courbes R_1 R'_1 correspondantes. Le minimum de R_2 obtenu pour la longueur d'onde de 1240 Å, permet *(A.V)* d'estimer la grandeur a à 310 Å. Par approches successives nous avons obtenu les deux courbes théoriques (d,e) les plus voisines de

R_2, calculées pour chaque longueur d'onde de mesures par $R_o-(\Delta R_1 + \Delta R_2)$ a étant 310 Å pour les 2 courbes, σ étant égal à 18 Å pour la courbe d et à 19 Å pour la courbe e. On peut attribuer à la couche mince (MgF_2 + Al) étudiée une valeur a de 310 Å et une valeur σ de 18,5 Å. Nous remarquons que l'accord entre les valeurs théoriques et expérimentales est excellent pour les longueurs d'onde supérieures à λp. Par contre, pour les longueurs d'onde comprises entre λp et 1000 Å, la concordance est moins bonne. Ceci est dû vraisemblablement au fait que la loi de répartition des aspects superficiels n'obéit pas exactement à la loi théorique choisie (répartition gaussienne), ou plus probablement au fait que dans l'expression de ΔR_2 (*A.V.25*) *RITCHIE* ne tient pas compte de la durée de vie du plasmon, le temps de relaxation du phénomène de désexcitation se traduisant par un élargissement plus ou moins grand autour de la fréquence de résonance |123|. Pour les longueurs d'onde inférieures à 1000 Å où seul le phénomène de diffusion intervient, la correspondance expérience-théorie est bien confirmée dans les limites de la précision admise sur les mesures du facteur de réflexion.

Les résultats obtenus |124| en utilisant successivement des sous-couches de fluorure de magnésium, de fluorure de lithium et de fluorure de calcium, sont reproduits sur les figures 76, 77, 78 (courbes en traits pleins). Les courbes en traits pointillés sont les courbes théoriques pour différentes valeurs de σ et de a permettant d'"encadrer" les données expérimentales.

Nous résumons dans le tableau III-8 les caractéristiques des différents dépôts.

Il résulte de cette étude :

1°) que la sous-couche diélectrique induit des aspérités présentant une longueur d'autocorrélation propre au diélectrique,

2°) que la rugosité croît avec l'épaisseur du diélectrique.

Le premier point est illustré par la figure 79 où sont représentés les aspects superficiels de couches de fluorure de calcium d'épaisseur 1000 Å recouvertes de couches minces d'aluminium d'épaisseurs différentes,(respectivement de 250, 500, 750 et 1000 Å) pour les clichés

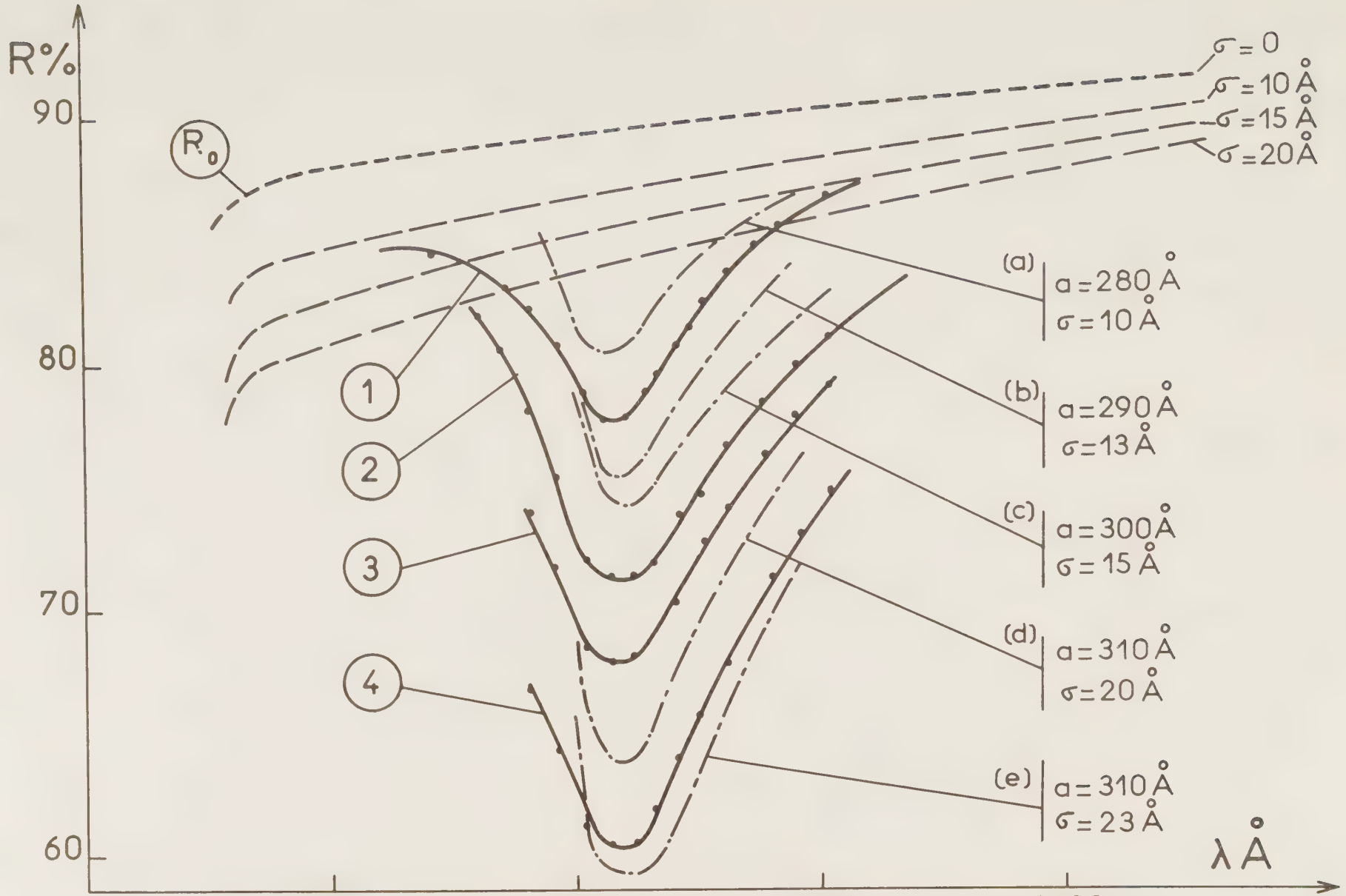

R%
90
80
70
60
R_0
σ = 0
σ = 10 Å
σ = 15 Å
σ = 20 Å
1
2
3
4
(a) a = 280 Å σ = 10 Å
(b) a = 290 Å σ = 13 Å
(c) a = 300 Å σ = 15 Å
(d) a = 310 Å σ = 20 Å
(e) a = 310 Å σ = 23 Å
λ Å
1000
1200
1400
1600

FIG - 76

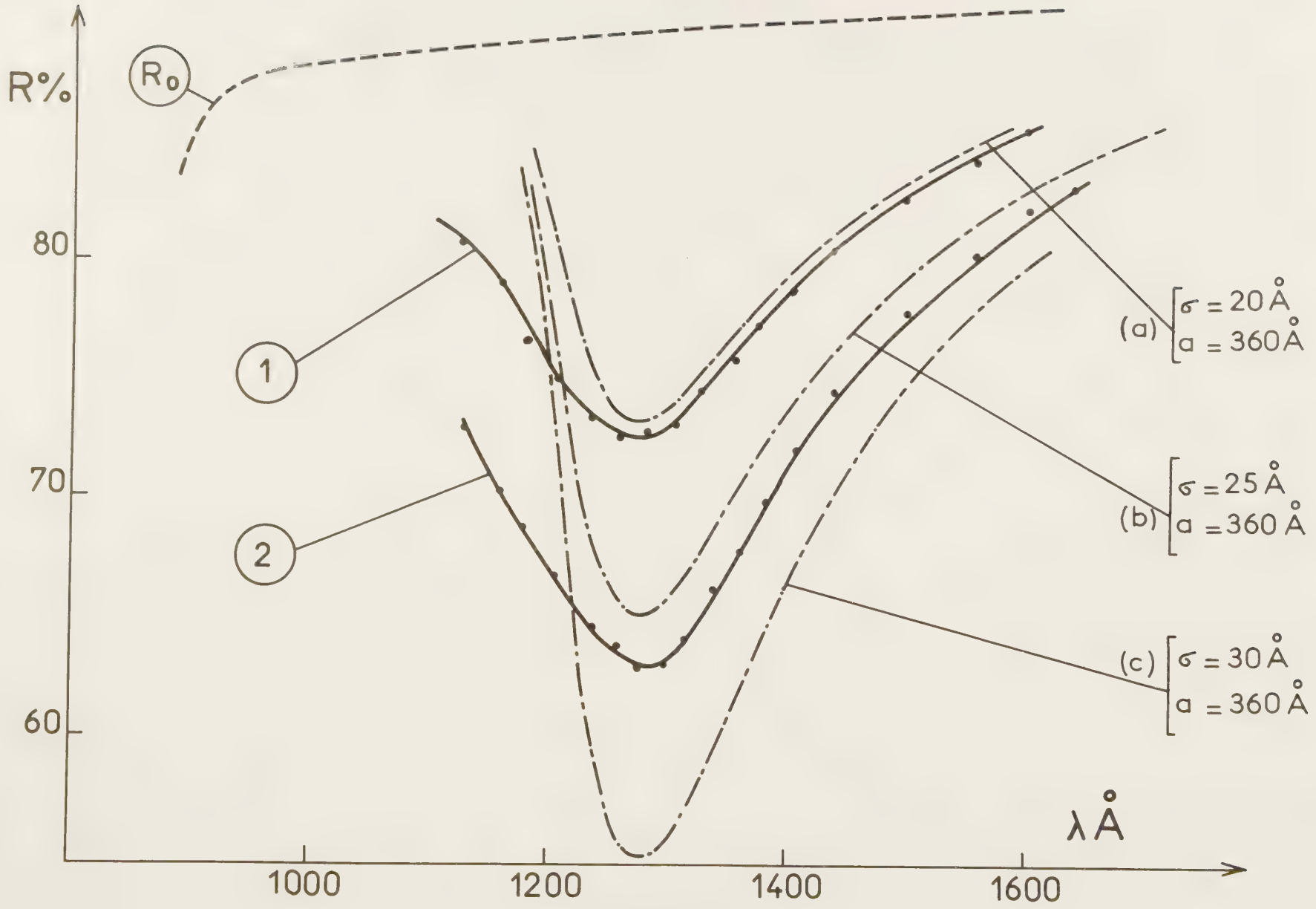

R%
80
70
60
R_0
1
2
(a) σ = 20 Å
a = 360 Å
(b) σ = 25 Å
a = 360 Å
(c) σ = 30 Å
a = 360 Å
λ Å
1000
1200
1400
1600

FIG-77

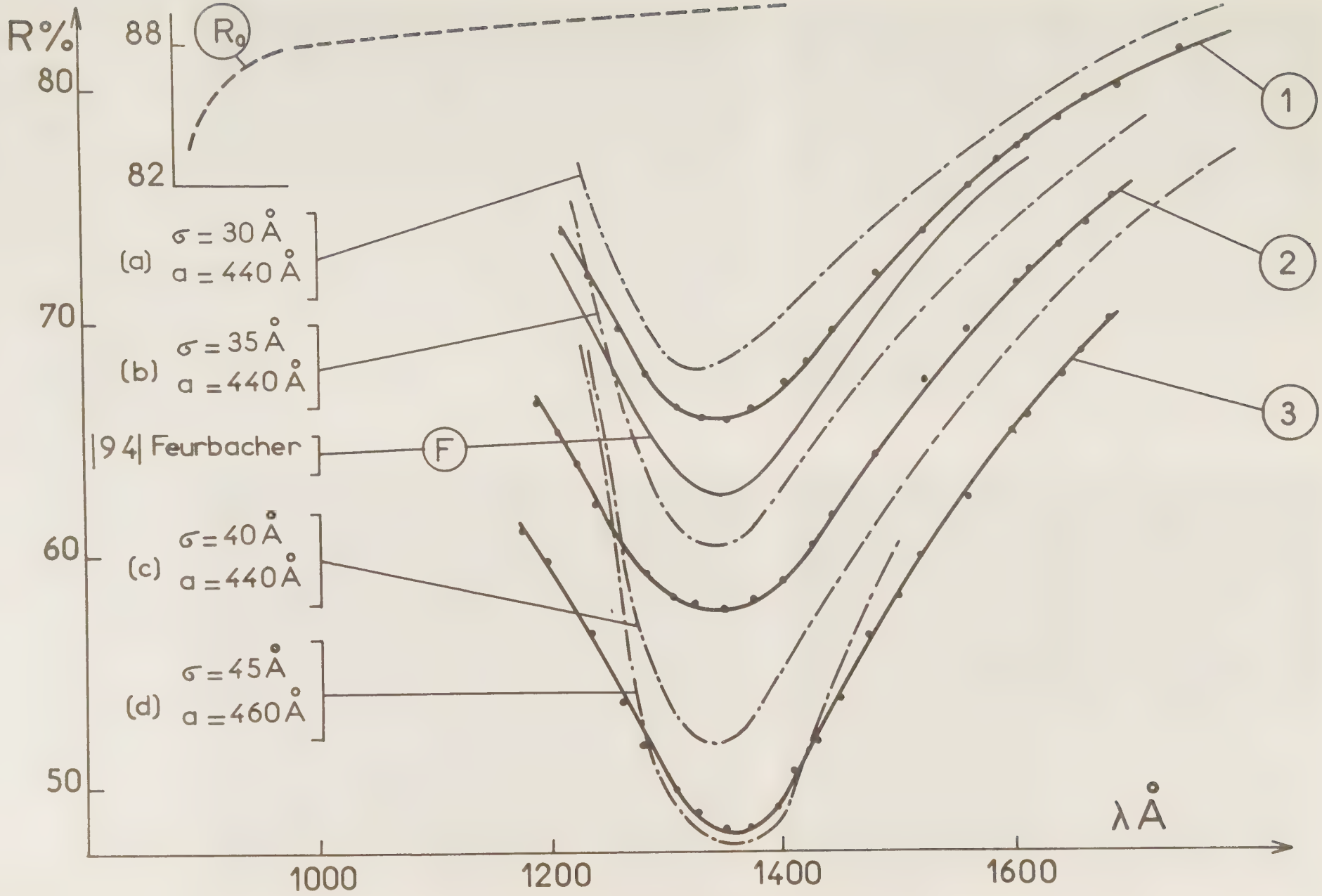

R%
88
82
80
70
60
50
R_0
(a) σ = 30 Å
a = 440 Å
(b) σ = 35 Å
a = 440 Å
|94| Feurbacher
F
(c) σ = 40 Å
a = 440 Å
(d) σ = 45 Å
a = 460 Å
1
2
3
λ Å
1000
1200
1400
1600

FIG-78

FIG_79

a, b, c et d. Nous remarquons qu'il y a comblement progressif des "vallées" et adoucissement du relief de la surface lorsque l'épaisseur d'aluminium croît. Par contre, la distance séparant les défauts semble conservée, ce qui implique une longueur d'autocorrélation a constante si la distribution des défauts semble donc caractéristique de la sous-couche diélectrique. L'épaisseur croissante d'aluminium provoque donc, d'un dépôt à l'autre, une diminution de la rugosité σ. C'est pourquoi nous avons, dans cette étude, recouvert toutes les sous-couches diélectriques d'une couche d'aluminium aussi semblable que possible d'un échantillon à l'autre en fixant l'épaisseur de celle-ci à 900 Å et le temps d'évaporation à 20 secondes, afin d'obtenir la même participation de l'aluminium à la rugosité de l'ensemble diélectrique plus aluminium.

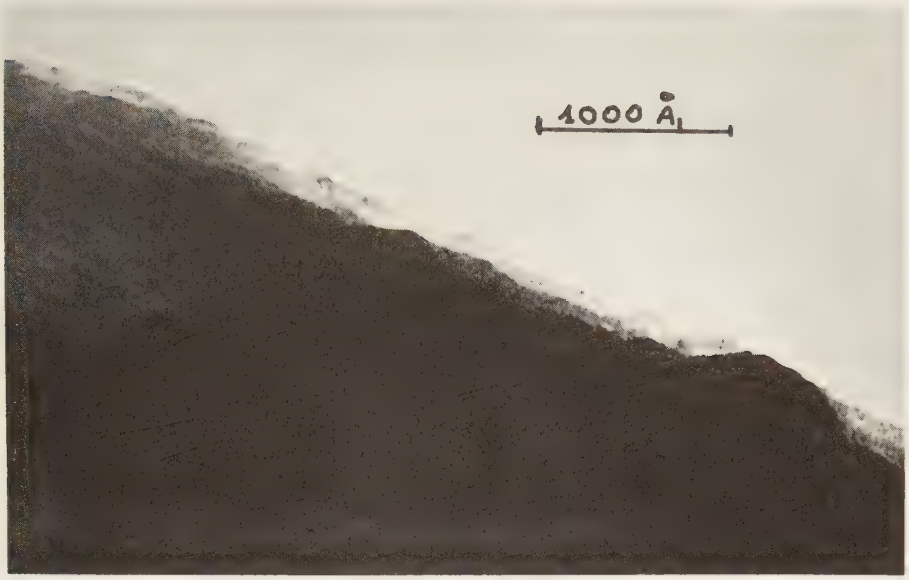
Nous voyons en outre sur la figure 80, photos (a,b,c) relatives au MgF_2, LiF, CaF_2 que chaque fluorure utilisé comme sous-couche présente un relief différent, la taille et la forme des cristallites caractérisant chaque diélectrique. Les échelles dessinées sur chaque cliché permettent d'évaluer la distance entre les défauts superficiels, distance en bon accord avec les longueurs d'autocorrélations indiquées dans le tableau précédent.

Pour le second point, on peut considérer d'après les courbes des figures 76, 77, 78 que la rugosité σ de l'ensemble diélectrique plus aluminium croît au fur et à mesure que l'épaisseur du diélectrique croît et que l'allure générale des courbes expérimentales s'éloigne de celle des courbes théoriques. *RITCHIE* |119| a indiqué que les comparaisons possibles entre théorie et expérience devaient être appliquées à des valeurs de ΔR_2 relativement faibles ($\Delta R_2 \simeq 0{,}2$). En effet, le calcul de ΔR_2 a été fait avec certaines approximations, en particulier on a considéré que le champ électrique du photon incident n'est pas perturbé par la création du plasmon et que la vitesse de la perturbation hydrodynamique dans le gaz d'électrons libres est très petite ($\beta/C \to 0$). Pour les grandes valeurs de ΔR_2, il faudrait tenir compte dans les relations des termes d'ordre supérieur au premier et également du fait que l'incidence du faisceau n'est pas une incidence normale (15° environ).

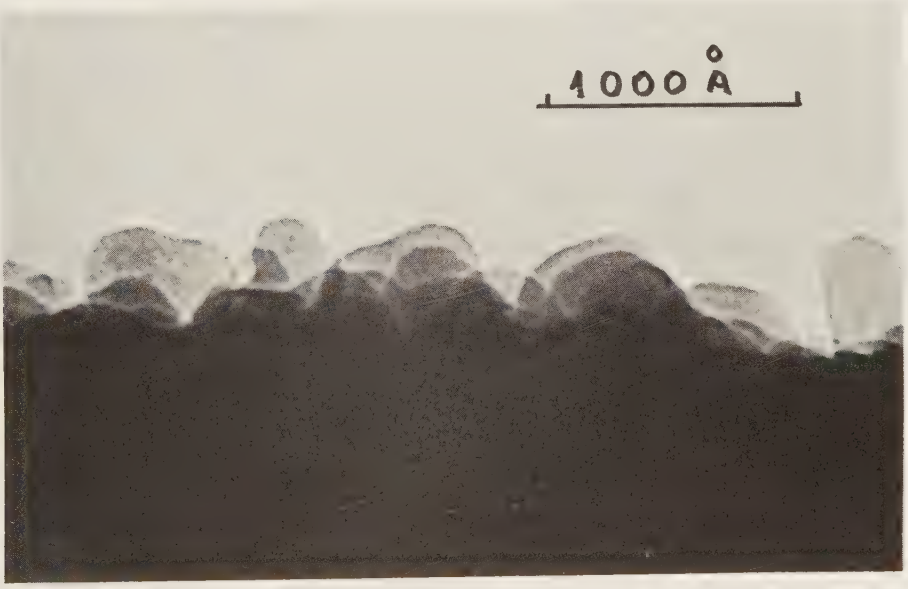
Sur la figure 78, sont également reportés les résultats expérimentaux obtenus par *FEUERBACHER* |66| pour des dépôts réalisés dans des

TABLEAU III-8

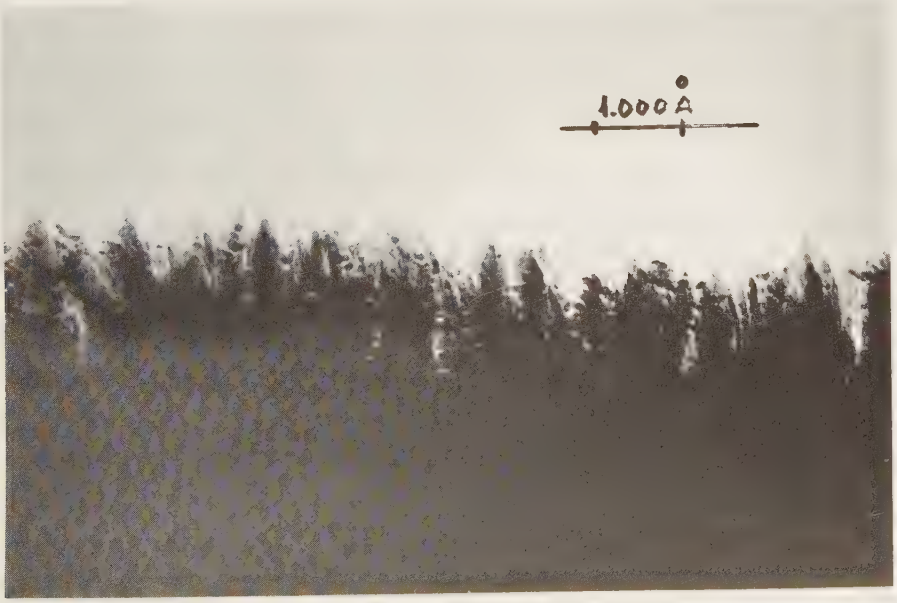
	Courbe Exp.	Epaisseur de la sous-couche Å	σ Å	a Å
MgF_2 Fig. 76	1	250	12	290
	2	500	17	300
	3	750	19	300
	4	1000	23	310
LiF Fig. 77	1	400	21	360
	2	800	26	360
CaF_2 Fig. 78	1	750	32	440
	2	1500	37	440
	3	1750	45	460
	F [66]	1000	34	450



MgF_2



LiF



CaF_2

FIG_80

conditions voisines des nôtres. La courbe F est le pouvoir réflecteur d'une couche d'aluminium de 1000 Å déposée sur une sous-couche de fluorure de calcium de 1000 Å d'épaisseur. Partant des valeurs R_o de l'aluminium indiquées par cet auteur, nous avons, par application de la relation (*A.V,25*), évalué la rugosité σ à 34° et la longueur d'autocorrélation a à 445 Å, ce qui confirme nos conclusions précédentes à 5 Å près pour la valeur de a.

La figure 81 reproduit les observations d'*ENDRIZ* |123| concernant des couches d'aluminium d'épaisseurs comprises entre 800 et 1000 Å déposées sur du fluorure de calcium d'épaisseurs comprises entre 800 et 2650 Å. Bien que ces dépôts ne puissent être directement comparés à nos échantillons puisque la limite supérieure d'épaisseurs du CaF_2 est beaucoup plus élevée que pour nos mesures, il apparaît que pour la plus faible rugosité, c'est-à-dire dans les conditions les plus proches des nôtres, les valeurs relevées par *ENDRIZ* sont voisines de nos résultats. Par contre, quand l'épaisseur des couches de CaF_2 est très grandes , les travaux d'*ENDRIZ* montrent non seulement que la rugosité augmente mais que la longueur d'autocorrélation augmente également ; ceci peutpeut-être s'expliquer par des effets secondaires dans la cristallisation des dépôts (tensions interne et superficielle) provoquant des défauts superficiels plus importants.

Les courbes (1) (2) (3) (4) (5) de la figure 82 sont relatives au travail de *STANFORD* |125|, elles montrent les effets produits sur des couches d'argent déposées sur des couches de rugosités croissantes de CaF_2. La contribution du plasmon de surface de l'argent est exprimée ici sous la forme de la grandeur ΔR_2 en fonction de la longueur d'onde d'observation. Etant donné que pour l'argent, la longueur d'onde du plasmon de surface est 3400 Å, nous avons, à l'aide du programme de calcul établi *annexe VII*, évalué pour les valeurs σ indiquées par cet auteur les valeurs a fournissant les courbes théoriques les plus proches des courbes expérimentales. Ces courbes théoriques reproduites en pointillés indiquent que la longueur d'autocorrélation a varie de 440 à 480 Å lorsque la rugosité des dépôts croît, ce qui correspond à ± 10 Å près, à nos valeurs.

Bien entendu l'application de la relation *A.V,25* suppose que le milieu dans lequel baigne la surface observée est le vide d'indice $n_o = 1$.

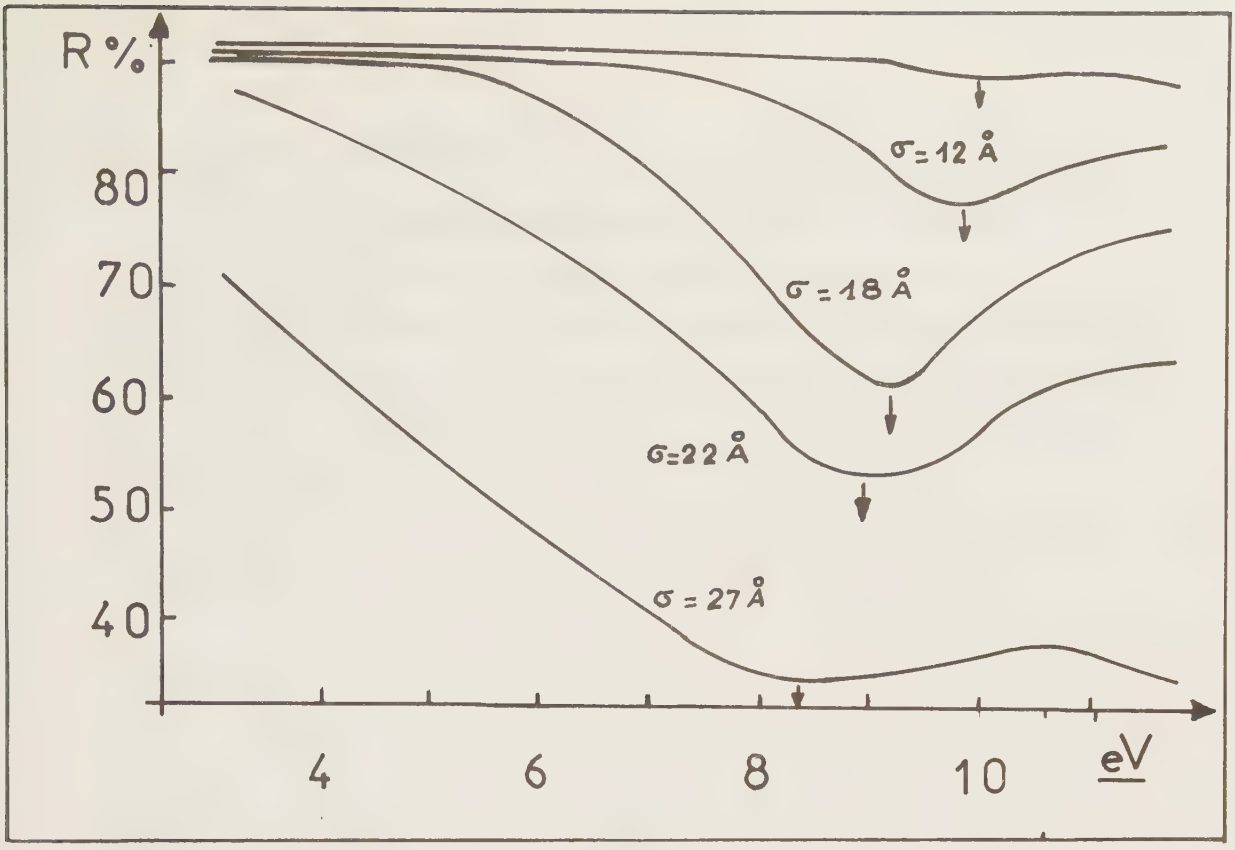

R %
80
70
60
50
40
σ = 12 Å
σ = 18 Å
σ = 22 Å
σ = 27 Å
4
6
8
10
eV

FIG 81

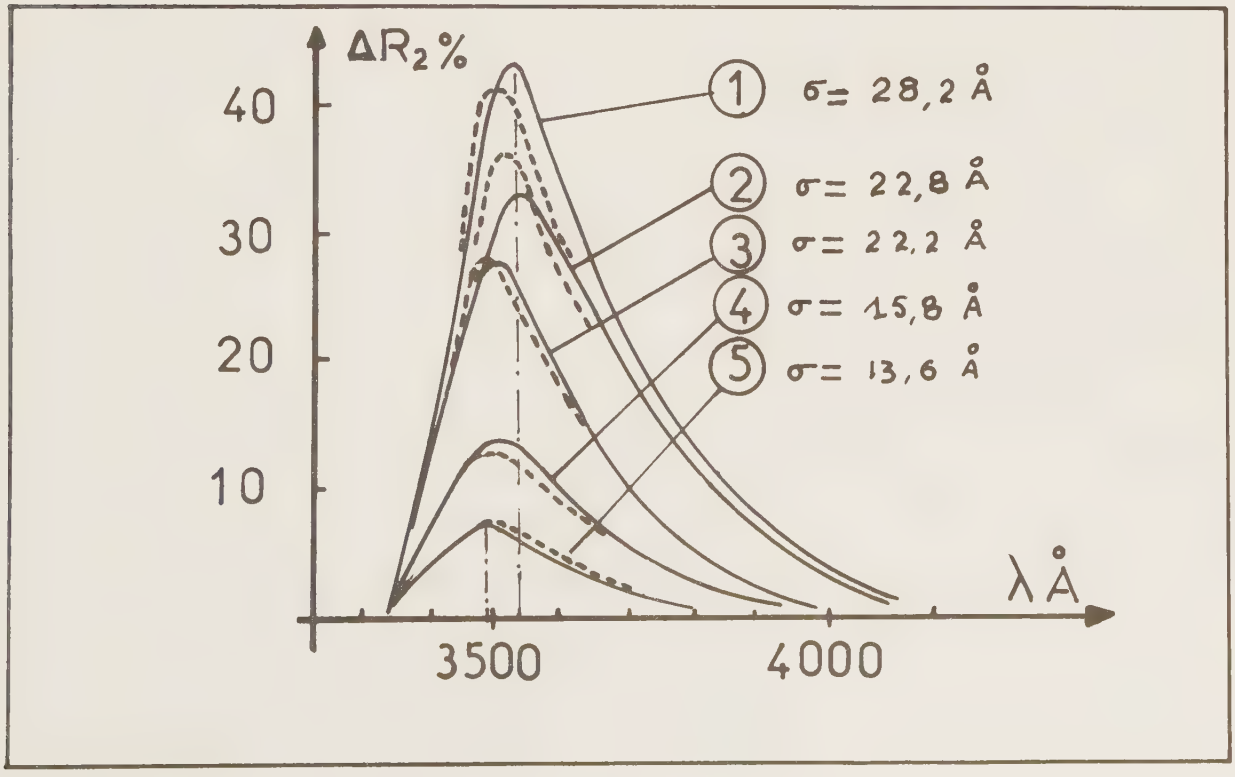

ΔR2 %
40
30
20
10
1 σ = 28,2 Å
2 σ = 22,8 Å
3 σ = 22,2 Å
4 σ = 15,8 Å
5 σ = 13,6 Å
λ Å
3500
4000

FIG 82

sinon la longueur d'onde du plasmon de surface serait $\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon}}$ où ε est la constante diélectrique du milieu remplaçant le vide.

La longueur d'onde de résonance pour laquelle se produit l'excitation dépend du plasmon de surface du milieu avec lequel la couche métallique est en contact et ce point particulier fera l'objet du prochain chapitre.

III.3 - COUCHES MULTIPLES.

III.3.1 - Vieillissement des couches.

L'aluminium et le magnésium sont des métaux très sensibles à l'action de l'oxygène et de la vapeur d'eau ; même sous ultra-vide la pollution superficielle peut affecter fortement les qualités réflectrices de couches minces de ces matériaux. Si d'un point de vue théorique la formation d'une couche superficielle différente du produit initial peut être prise en compte dans les grandeurs calculées, d'un point de vue pratique les effets de la pollution doivent être évités ou minimisés par une protection des surfaces fraichement préparées.

Aluminium.

Une étude de CANFIELD |126| a montré l'influence de l'oxydation superficielle de couches minces d'aluminium sur leurs qualités optiques. En particulier, on peut voir que pour la longueur d'onde de 1216 Å, le facteur de réflexion passe de 85 % à 40 % environ pour une couche recouverte d'alumine due à l'exposition à la pression atmosphérique. D'autres résultats pouvant être relevés dans les références |126| |127| ; nous avons représenté sur la figure 83 l'évolution en fonction du temps du pouvoir réflecteur de l'aluminium pour la seule longueur d'onde de 1216 Å sous des conditions expérimentales différentes.

Les valeurs indiquées par la courbe (1) sont celles que nous avons mesurées dans notre premier dispositif muni de fenêtres de LiF celles de la courbe (2) ont été relevées pour des couches étudiées dans le dispositif sans fenêtre. La comparaison entre ces deux courbes montre que l'oxydation superficielle est plus grande (pendant les cinq premières minutes qui suivent la formation des dépôts) dans le premier appareil. Ceci est sans doute dû au fait que les moyens de pompage sont moins énergiques dans le premier dispositif (*Annexe III*). L'influence de la pression est encore plus visible sur la courbe (3) qui correspond aux observations de CANFIELD |126| pour des dépôts effectués et observés à 10^{-7} torr. Enfin la courbe (4) due à FEUERBACHER |66| obtenue pour des couches d'aluminium réalisées dans des conditions voisines de la courbe (2) indique une évolution semblable de R ; la différence entre les valeurs absolues résulte vraisemblablement de la rugosité différente des supports.

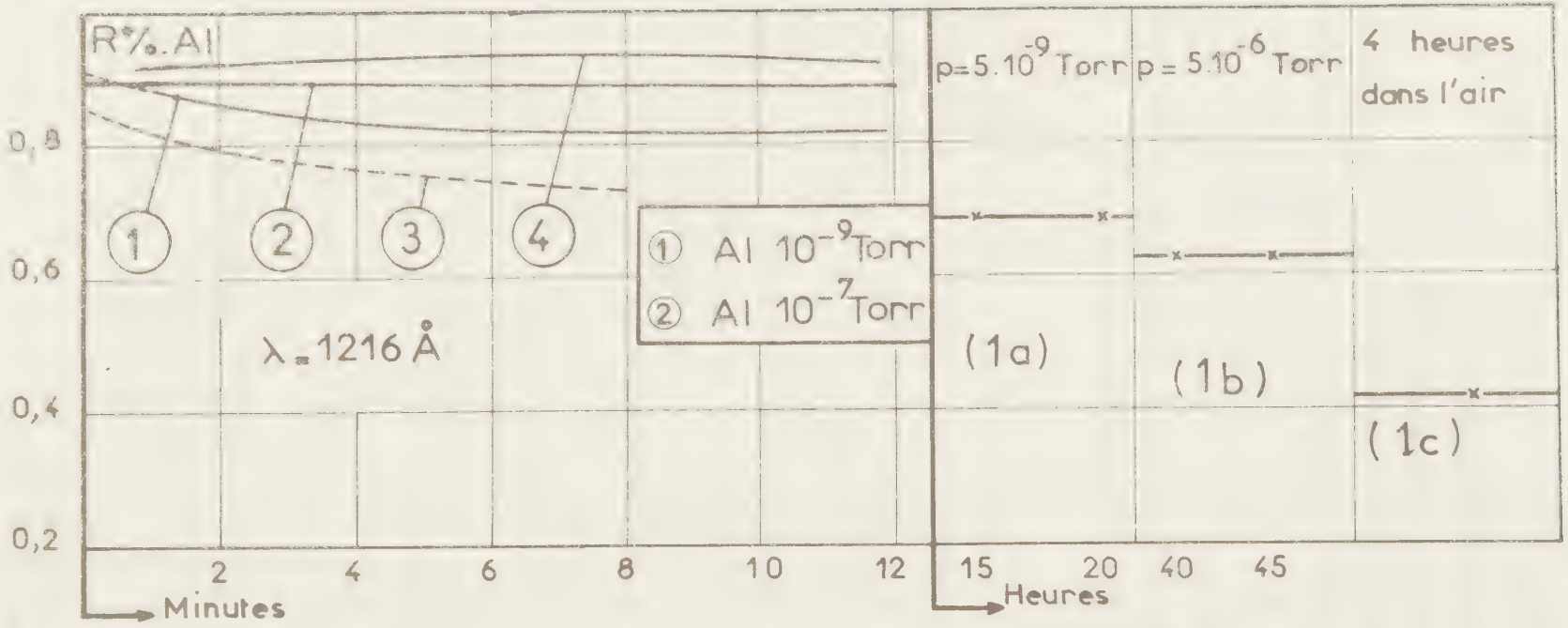

R%.Al
p=5.10⁻⁹ Torr
p = 5.10⁻⁶ Torr
4 heures dans l'air
0,8
0,6
0,4
0,2
1
2
3
4
① Al 10⁻⁹Torr
② Al 10⁻⁷Torr
λ=1216 Å
(1a)
(1b)
(1c)
2
4
6
8
10
12
15
20
40
45
Minutes
Heures

FIG _83

Les courbes (1 a) (1 b) (1 c), relatives au vieillissement de dépôts sous les pressions respectives de 5.10^{-9} torr, 5.10^{-6} torr, et sous la pression atmosphérique montrent comment la couche d'oxyde superficielle peut réduire les qualités de réflexion du dépôt initial (2) jusqu'à une valeur de R (minimum) correspondant au facteur de réflexion de l'aluminium recouvert d'une couche d'alumine de 50 Å environ |127|, épaisseur à partir de laquelle le film d'Al_2O_3 protège l'aluminium de l'action de l'atmosphère résiduelle. En vertu de la relation (*A.V,22*) la couche superficielle d'oxyde doit déplacer vers les grandes longueurs d'onde le minimum de R dû à l'excitation de plasmon de surface. Cet effet est bien mis en évidence dans les résultats de *RAETHER* |128| à partir des mesures de collisions inélastiques des électrons sur des surfaces d'aluminium et de magnésium. La méthode optique ne permet pas de vérifier les mêmes effets car l'indice d'absorption k de l'alumine est trop grand dans la zone de longueurs d'onde inférieures à 1500 Å et l'amortissement du signal lumineux qui en résulte masque le phénomène, comme le montre la figure 84 où la courbe (1) est relative à une couche d'aluminium non oxydée et la courbe (2) à une couche d'aluminium oxydée dont on a mesuré R en fonction de la longueur d'onde.

Magnésium.

Si l'on compare les valeurs du pouvoir réflecteur R (exprimées en fonction de la longueur d'onde) de couches de magnésium différemment oxydées on peut voir, comme pour l'aluminium, que la couche superficielle qui se développe produit une baisse sensible du facteur de réflexion dans l'ensemble du domaine spectral. Les courbes (1) (2) (3) de la figure 85, relatives à des couches de magnésium étudiées, sous ultra-vide (1), sous vide poussé (2) et après remise à l'air illustrent ce phénomène. Conformément aux expériences de *RAETHER* |128| réalisées à partir de mesures de diffusion d'électrons par des surfaces de magnésium, on peut voir d'après les courbes (1) (2) que le creux de réflexion dû au plasmon de surface est déplacé vers les grandes longueurs d'onde par oxydation superficielle. Dans le cas d'une couche fortement polluée (3) nous constatons comme pour l'aluminium que le "damping" de R, dû à une forte valeur de l'indice d'extinction k_2 de la couche superficielle, masque le déplacement précédent. La figure 86 illustre l'influence de la pollution sur les valeurs R observées à des instants différents, courbes (1) (7) (8). Les courbes théoriques (2) (3) (4) (5) (6) permettent d'ailleurs d'évaluer les valeurs apparentes de l'indice k_2 du magnésium, plus ou moins oxydé, correspondant à ces

R%
80
60
40
20
1200
1600
2000
2400
λ Å
1
2
Al

FIG_84

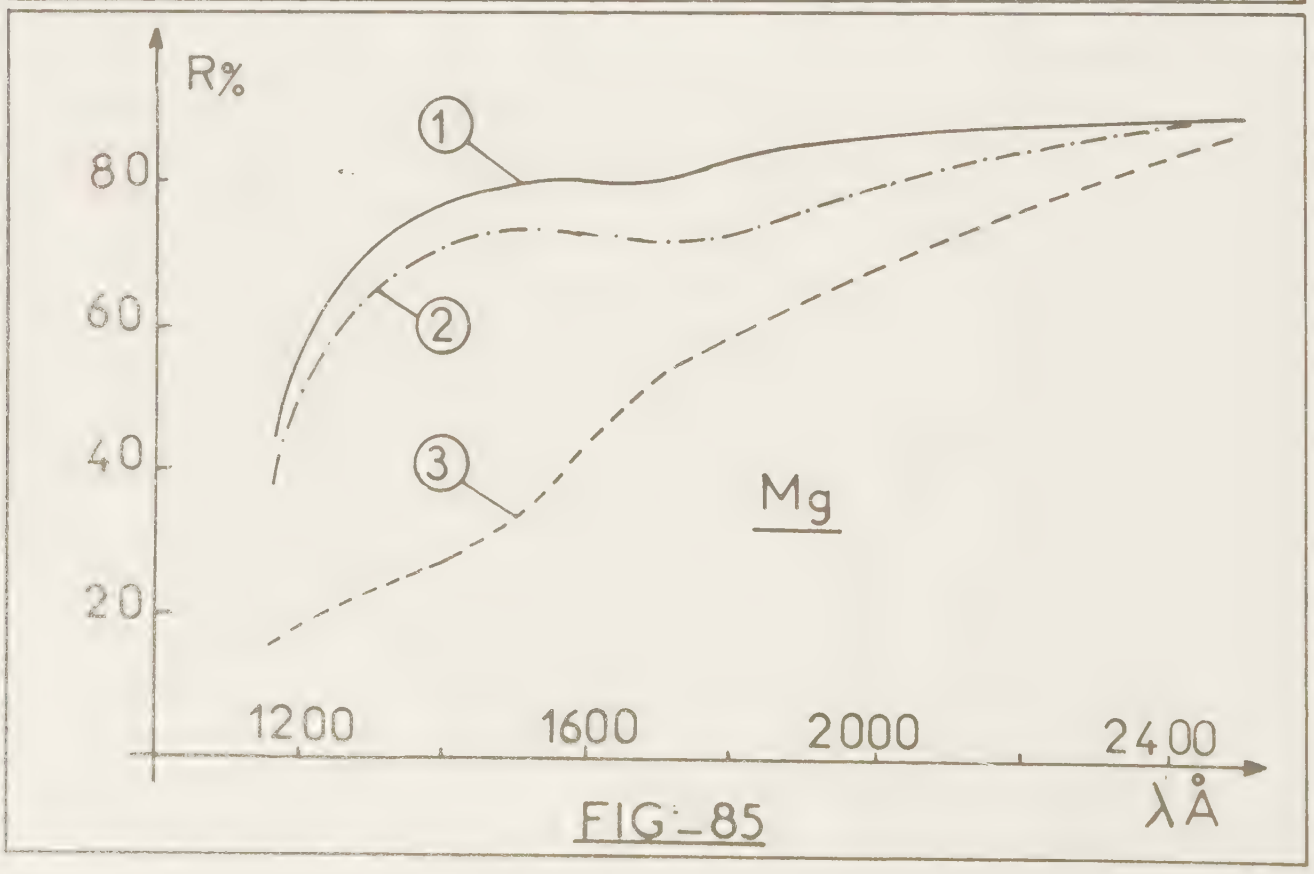

R%
80
60
40
20
1200
1600
2000
2400
λ Å
1
2
3
Mg

FIG_85

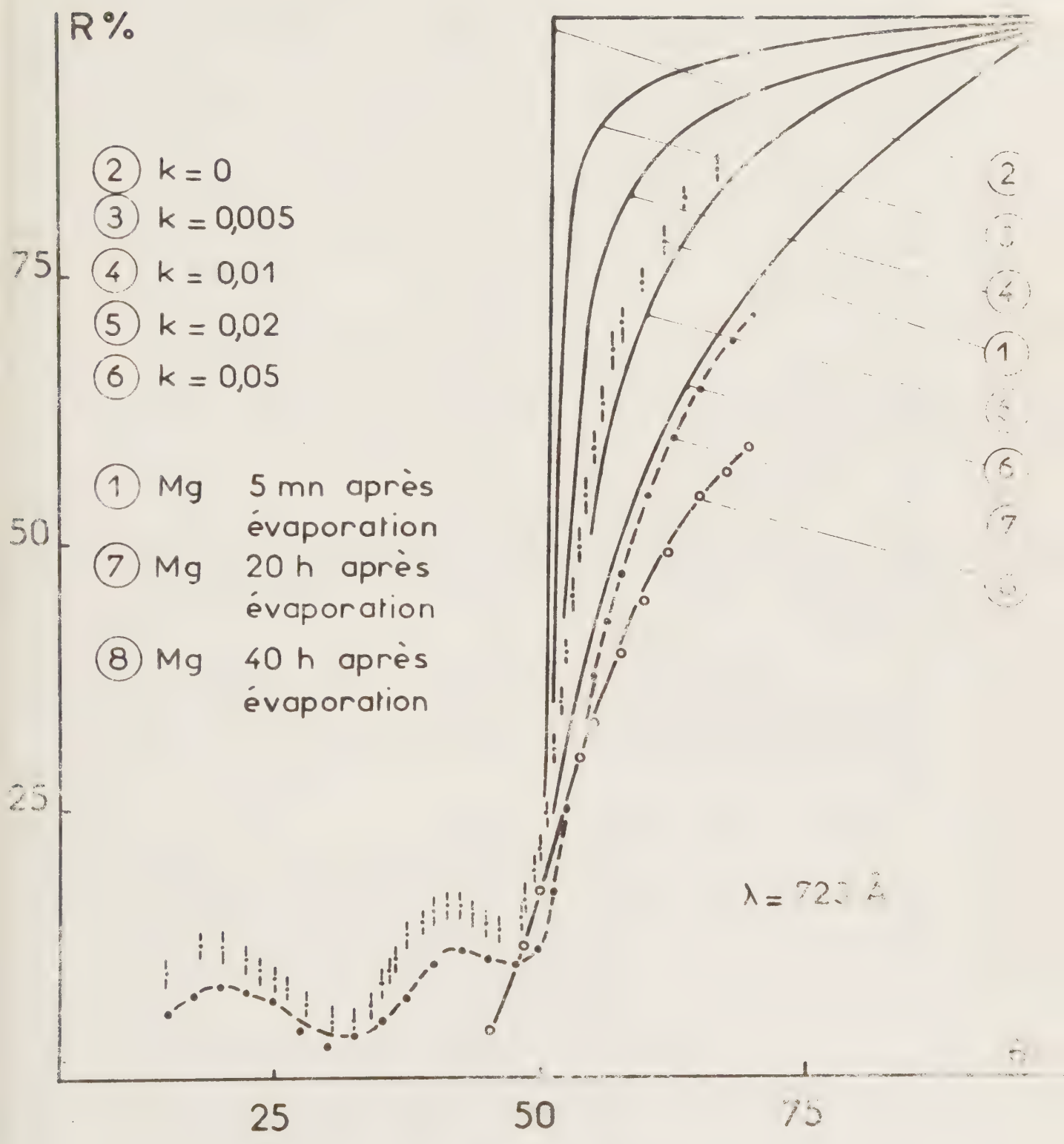

R %
(2) k = 0
(3) k = 0,005
(4) k = 0,01
(5) k = 0,02
(6) k = 0,05
(1) Mg 5 mn après évaporation
(7) Mg 20 h après évaporation
(8) Mg 40 h après évaporation
75
50
25
25
50
75
λ = 723 Å

FIG - 86

mesures. Dans son domaine d'application (λ < 1200 Å), la méthode de l'angle critique permettrait d'établir les constantes optiques de la couche superficielle polluante, mais l'épaisseur de celle-ci ne peut être connue au moment de la mesure car la couche évolue constamment et sa composition n'est pas parfaitement définie comme l'alumine dans le cas de l'aluminium |21|. Le magnésium est très sensible à la présence d'eau dans l'enceinte de mesure. En effet dans une enceinte soigneusement étuvée, dont l'atmosphère résiduelle présente un spectre de masse analogue à celui de la figure 88 (la pression partielle de vapeur d'eau est évaluée à 5.10^{-12} torr pour une pression totale de 3.10^{-10} torr) ; l'évolution du pouvoir réflecteur pour cinq longueurs d'onde ne présente pas de décroissance sensible pendant plusieurs heures comme le montrent les points expérimentaux (o) de la figure 89. Par contre, dans une enceinte dont l'atmosphère résiduelle de composition indiquée par la figure 87 (en particulier on remarque que la pression partielle d'eau représente $.10^{-8}$ torr pour une pression totale de 2.10^{-7} torr) nous voyons que le pouvoir réflecteur, représentée par les courbes en pointillés sur la figure 89, pour les mêmes longueurs d'onde que précédemment, décroît fortement en fonction du temps.

Etant donné que l'on souhaite généralement conserver aux surfaces réfléchissantes leurs qualités initiales, nous avons étudié la protection de surfaces d'aluminium par des diélectriques présentant un faible indice d'extinction k.

III.3.2 - Couches protégées.

Les couches minces de certains diélectriques ont été très souvent utilisées pour améliorer les qualités réflectrices de surfaces métalliques, dans le domaine de longueurs d'onde supérieures à 1000 Å |129| |130|. Elles sont même employées industriellement (optique d'appareils photographiques, filtres solaires, etc...).

Dans le domaine de l'ultraviolet, leur utilisation permet principalement de conserver les propriétés du métal choisi comme réflecteur. En effet, l'indice d'extinction k de ces diélectriques est trop élevé dans cette région pour que les interférences constructrices obtenues par réflexion sur les interfaces des surfaces vues par le rayonne-

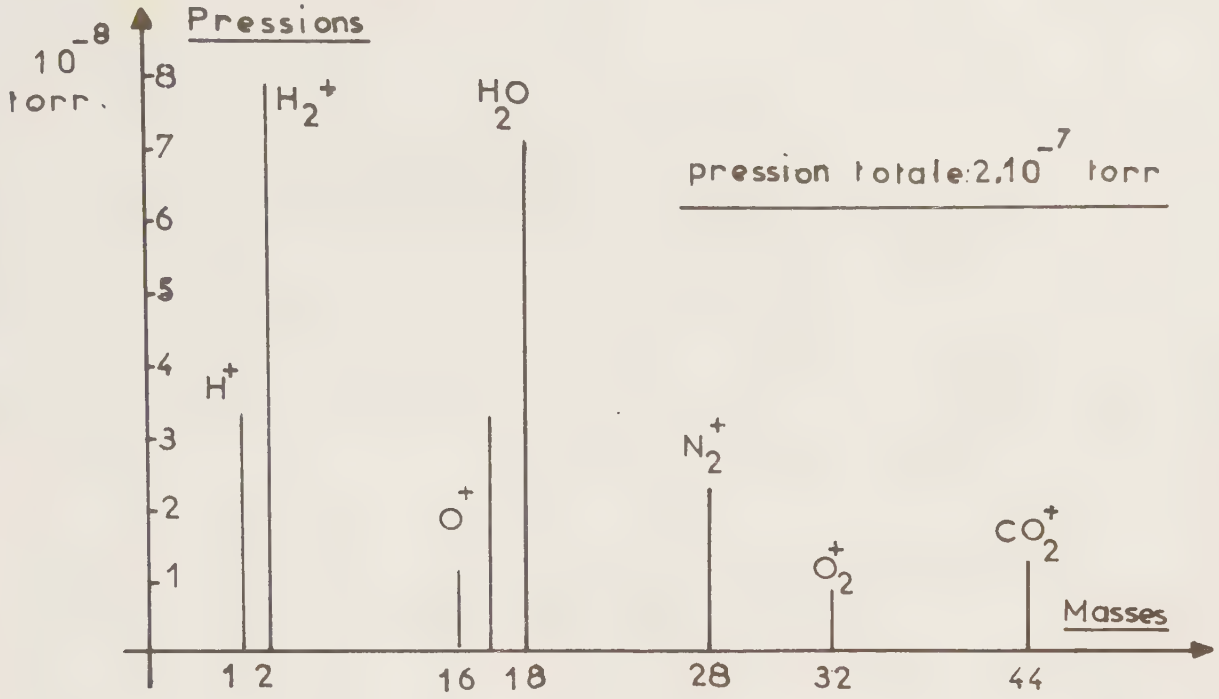

Pressions
10^{-8} torr.
H_2^+
H_2O
H^+
O^+
N_2^+
O_2^+
CO_2^+
pression totale: 2.10^{-7} torr
Masses
1 2
16 18
28
32
44

FIG-87

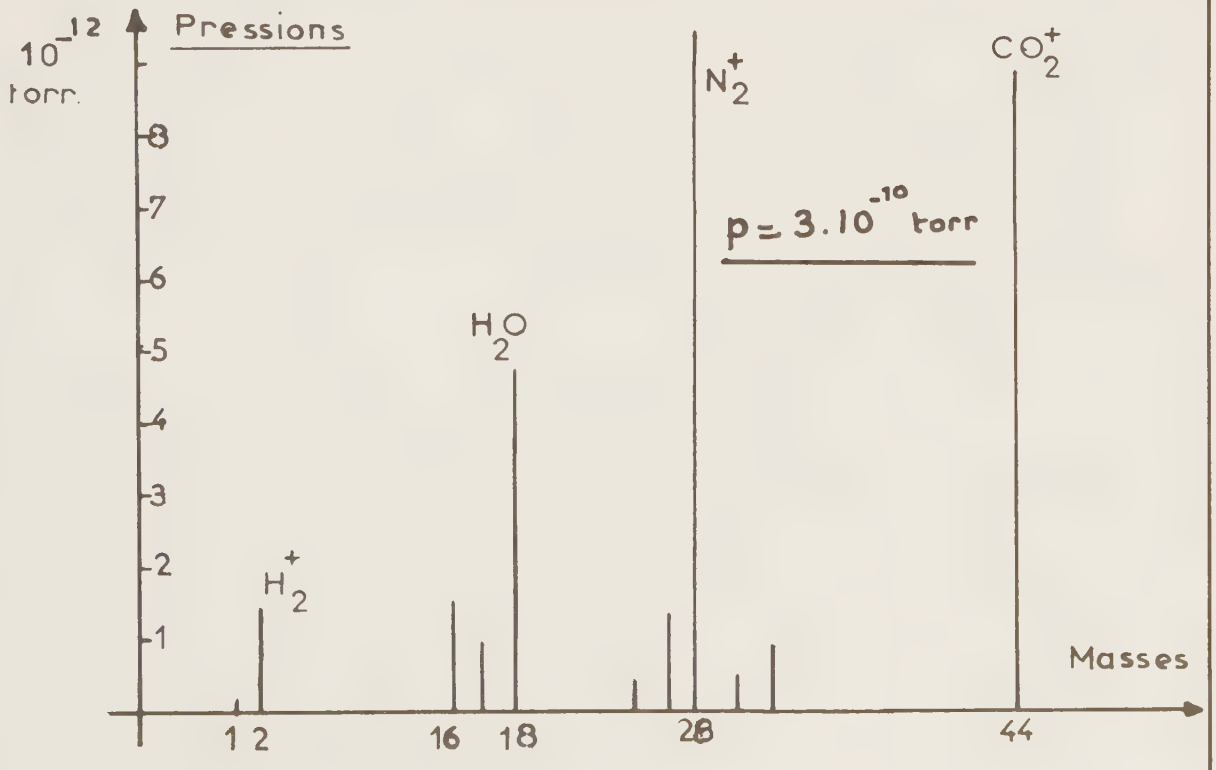

Pressions
10^{-12} torr.
N_2^+
CO_2^+
$p = 3.10^{-10}$ torr
H_2O
H_2^+
Masses
1 2
16 18
28
44

FIG-88

ment compensent l'absorption se produisant dans la lame diélectrique traversée.

Sous forme massive, le fluorure de lithium et le fluorure de magnésium permettent d'obtenir une bonne transmission du rayonnement UV (fig. 12) jusqu'à 1100 Å environ. Nous avons examiné l'influence de couches minces de ces deux matériaux sur des couches d'aluminium de 900 Å environ ayant des propriétés voisines des dépôts étudiés au § *III.1.* Nous avons également étudié leur influence sur des surfaces rugueuses préparées de façon analogue à celles du § *III.2.*

Couche d'Al recouverte de LiF.

Le fluorure de lithium semble le plus intéressant des diélectriques car il est le plus transparent vers les courtes longueurs d'onde (jusqu'à 1050 Å).

La figure 90 représente le facteur de réflexion d'une couche d'aluminium recouverte d'une couche mince de fluorure de lithium de 250 Å. Tant que les dépôts restent sous ultra-vide, nous n'avons noté aucune évolution de cette grandeur en fonction du temps. Par contre, après remise à la pression atmosphérique, l'évolution du pouvoir réflecteur représentée par la courbe (b), figure 90, indique une détérioration des qualités initiales des dépôts. Cette évolution est attribuée à l'hygroscopie du fluorure de lithium comme l'ont signalé *BRADFORD et al* |130| et beaucoup plus récemment *ADRIAENS* |131| et *HUNTER* |132|.

Aluminium recouvert de MgF_2.

Nous avons procédé, en utilisant le fluorure de magnésium a une étude plus complète que la précédente, car ce produit présente une stabilité et une inertie aux contaminations extérieures qui le rendent plus intéressant que le fluorure de lithium. A l'aide des résultats expérimentaux obtenus, nous avons évalué les constantes optiques du fluorure de magnésium entre 1000 et 1600 Å, zone qui correspond au bord de la première bande d'absorption de MgF_2. Nous pourrons comparer nos résultats aux constantes déterminées (de façon analogue au point de vue théorique, mais pour des conditions de préparation des dépôts différentes) par *CANFIELD* |126| et *Mlle FABRE* |133| |134|.

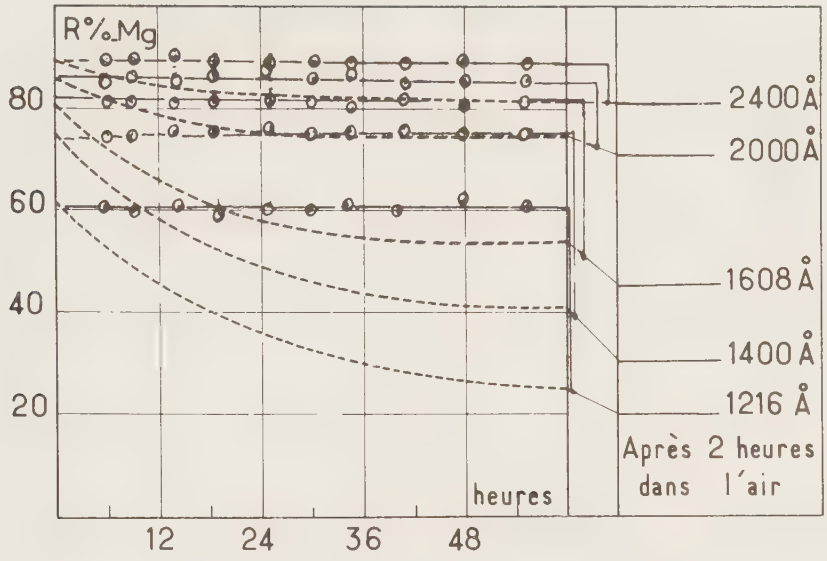

R%_Mg
80
60
40
20
12
24
36
48
heures
2400Å
2000Å
1608Å
1400Å
1216 Å
Après 2 heures
dans l'air

FIG-89

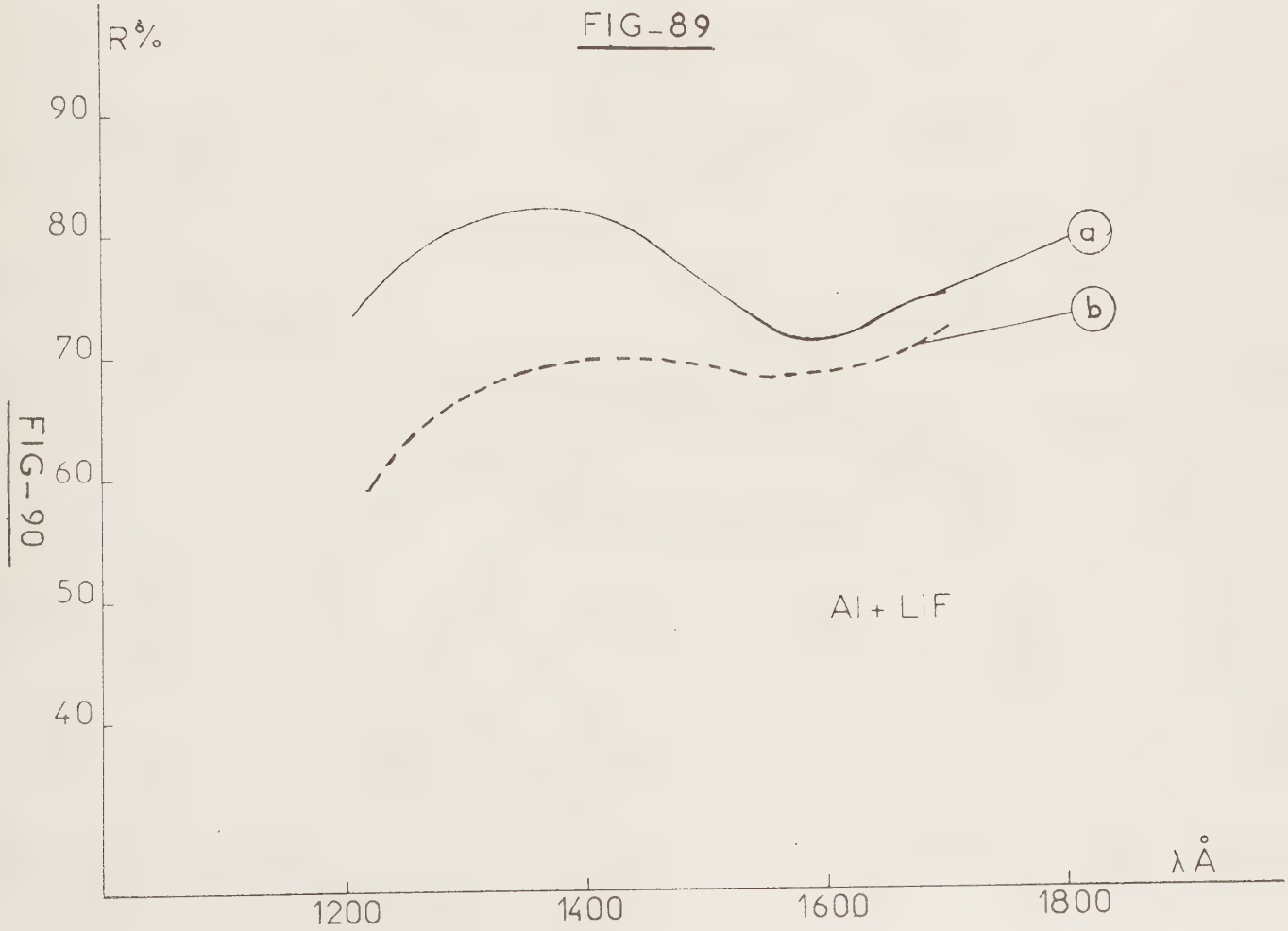

R%
90
80
70
60
50
40
a
b
Al + LiF
λÅ
1200
1400
1600
1800

FIG-90

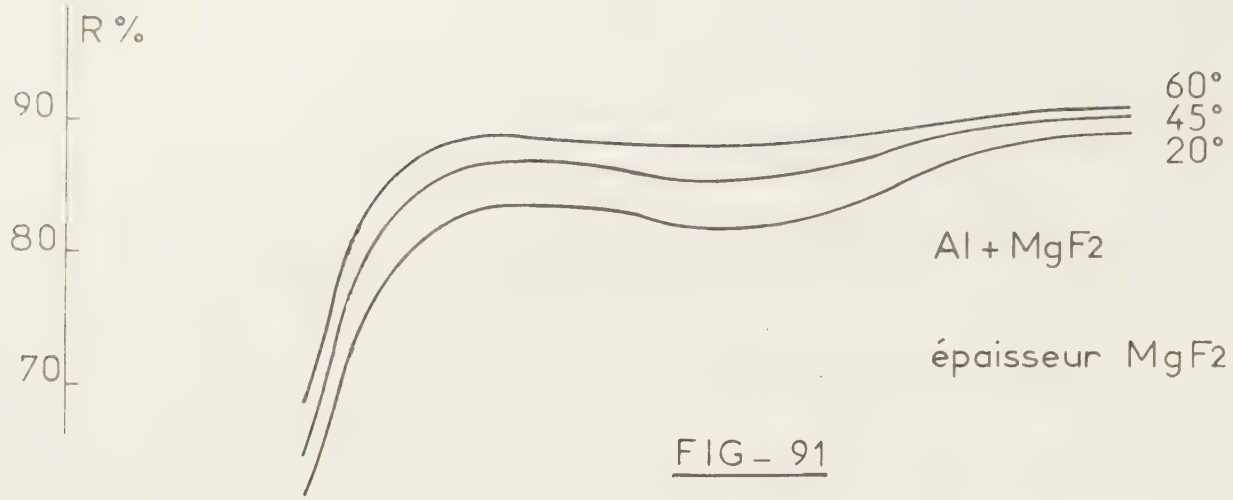


FIG - 91

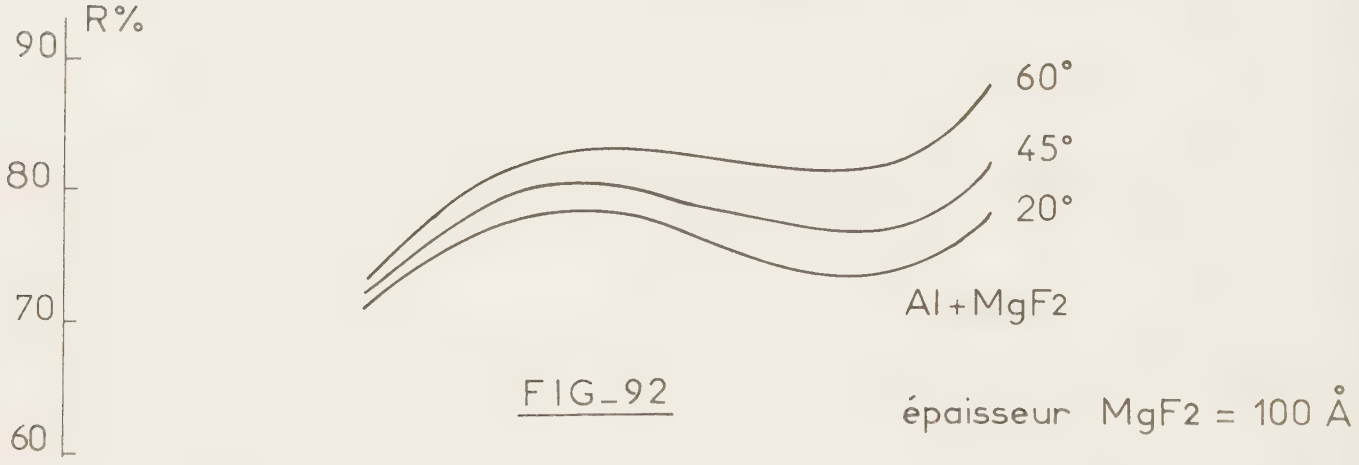


FIG - 92

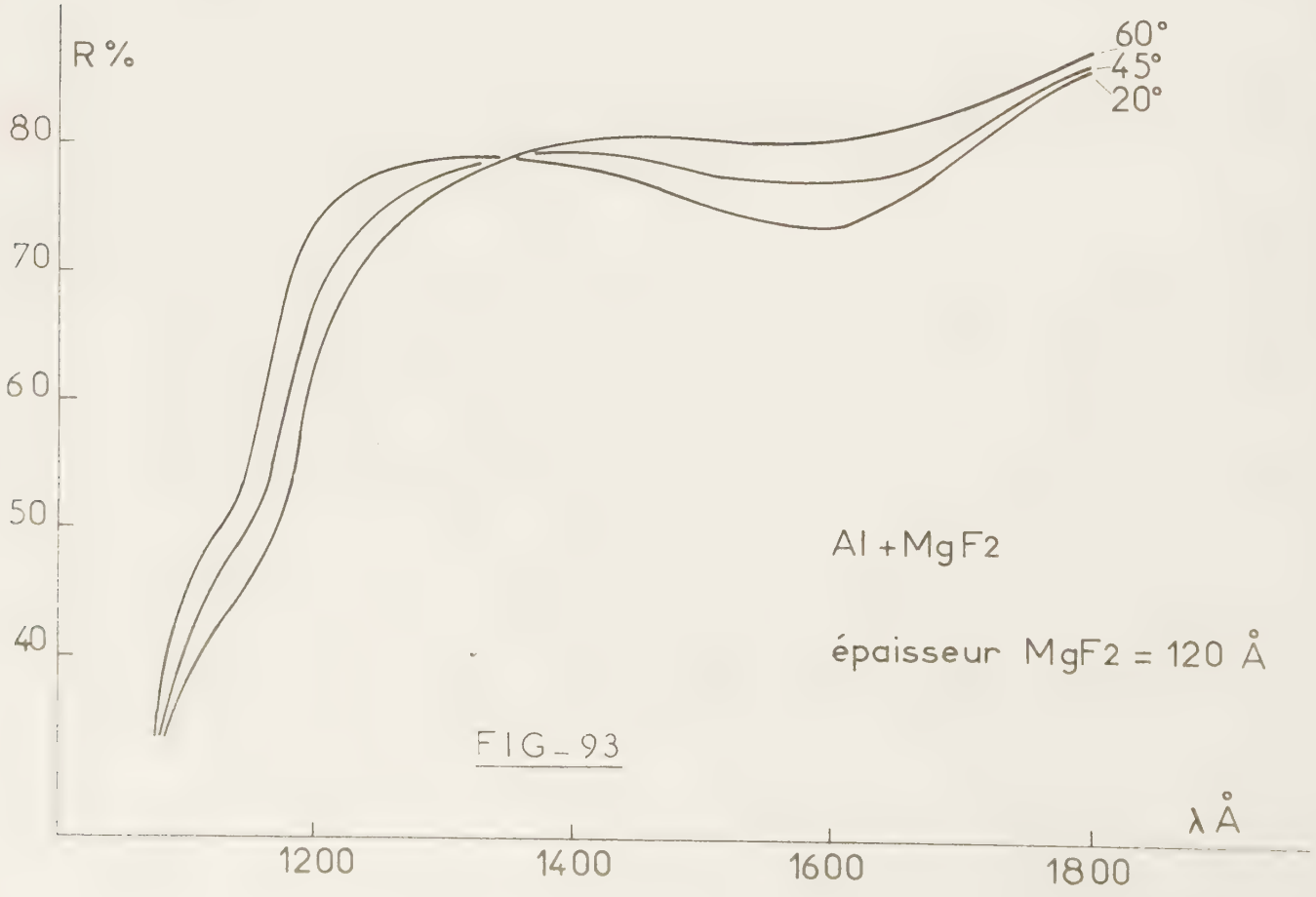


FIG - 93

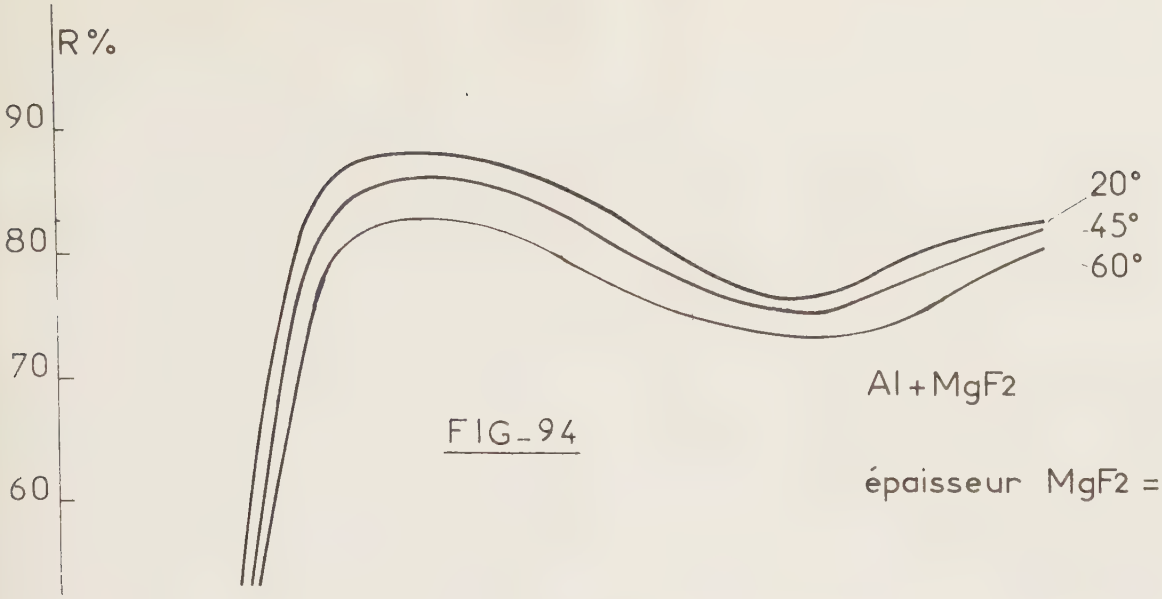


FIG-94

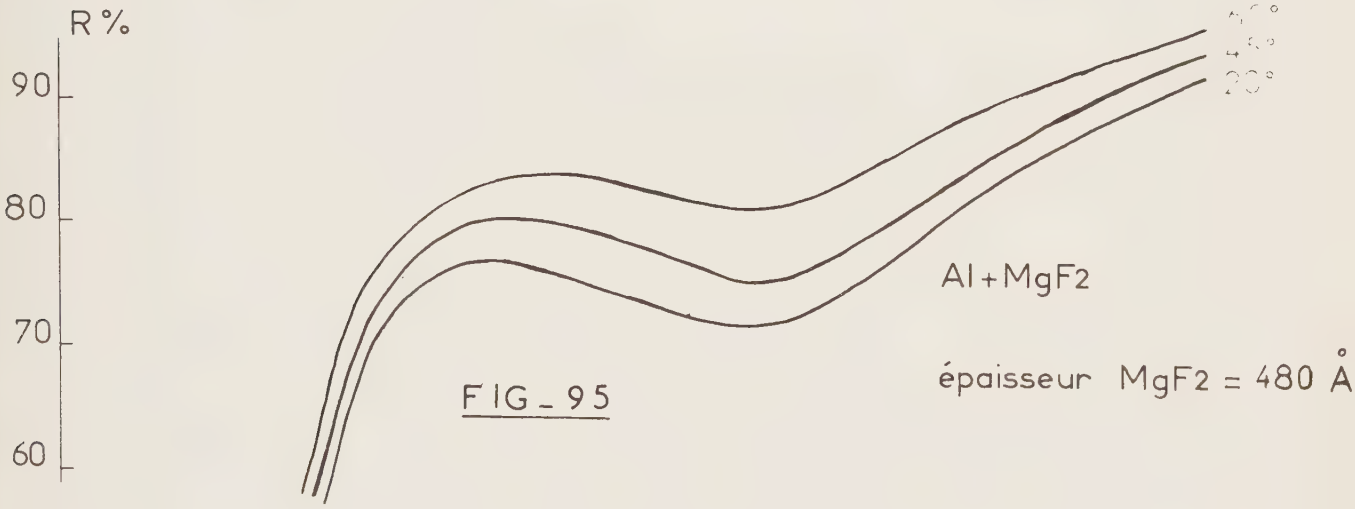


FIG-95

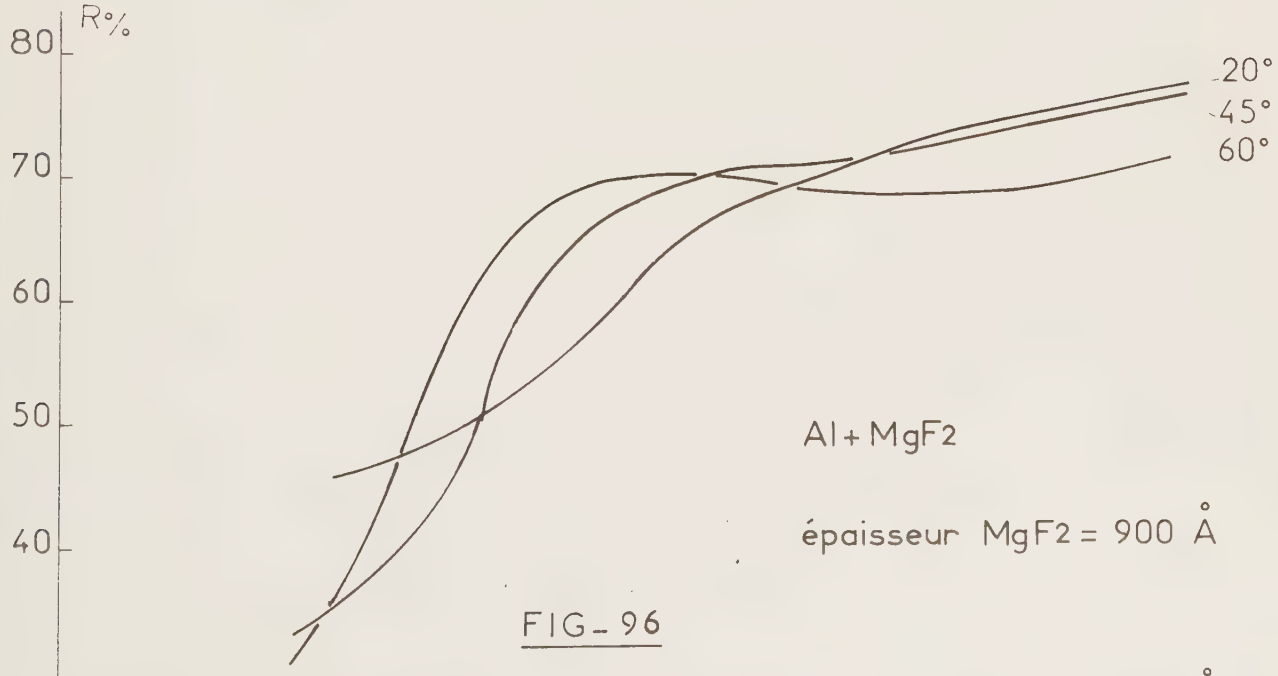


FIG-96

Les figures 91 à 96 indiquent en fonction de la longueur d'onde les pouvoirs réflecteurs de couches d'aluminium (préparées et étudiées dans notre dispositif sans fenêtre) recouvertes d'épaisseurs différentes de MgF_2. A partir du programme de calcul donné en *Annexe II* nous avons dressé des tables numériques permettant de confronter pour trois angles d'incidence (20, 45 et 60 degrés) les facteurs de réflexions théoriques et expérimentaux. Cette comparaison est représentée sur les figures 97, 98, 99 où nous indiquons par les courbes en trait continu les valeurs théoriques de P.R. pour n_2 donné et pour différentes valeurs de k_2 et par les zones striées le domaine des valeurs mesurées suivant l'épaisseur du MgF_2.

La figure 100 représente pour différentes longueurs d'onde les valeurs les plus probables des indices de réfraction et d'extinction du fluorure de magnésium |135| déterminées en fonction de l'épaisseur du dépôt du fluorure.

Les couches d'aluminium devant présenter autant que possible les mêmes qualités optiques (n_2 et k_2 identiques d'un échantillon à l'autre) nous avons vérifié avant la projection de MgF_2 que les dépôts d'aluminium possédaient bien le même facteur de réflexion (aux erreurs expérimentales près). Cette vérification est effectuée pour les longueurs d'onde de 1025, 1216, 1410 et 1608 Å, 10 à 15 mn après la formation des dépôts ; sous ultra-vide la formation d'une couche superficielle d'alumine ne peut avoir lieu pendant cette période ; sous vide classique, l'expérimentateur ne peut vérifier les propriétés des couches d'aluminium et l'évaporation du fluorure de magnésium doit être effectuée immédiatement après celle de l'aluminium sous peine d'obtenir une couche $Al + Al_2O_3 + MgF_2$.

Nous insistons sur cet aspect technique car il nous permet d'expliquer l'écart entre les valeurs d'indice déterminées par *Mlle FABRE* |134| (courbe (a) fig. 101) et les valeurs que nous donnons |135| (courbes (b) fig. 101). La croix (x) indique pour $\lambda = 1216$ Å les valeurs n_2 et k_2 mesurées par *CANFIELD et al* |120| pour des couches d'aluminium protégées (5 s après leur réalisation) par du fluorure de magnésium.

D'autres résultats plus récents |131| montrent qu'un recuit à 300° C des dépôts d'Al + MgF_2 provoque une amélioration sensible du fac-

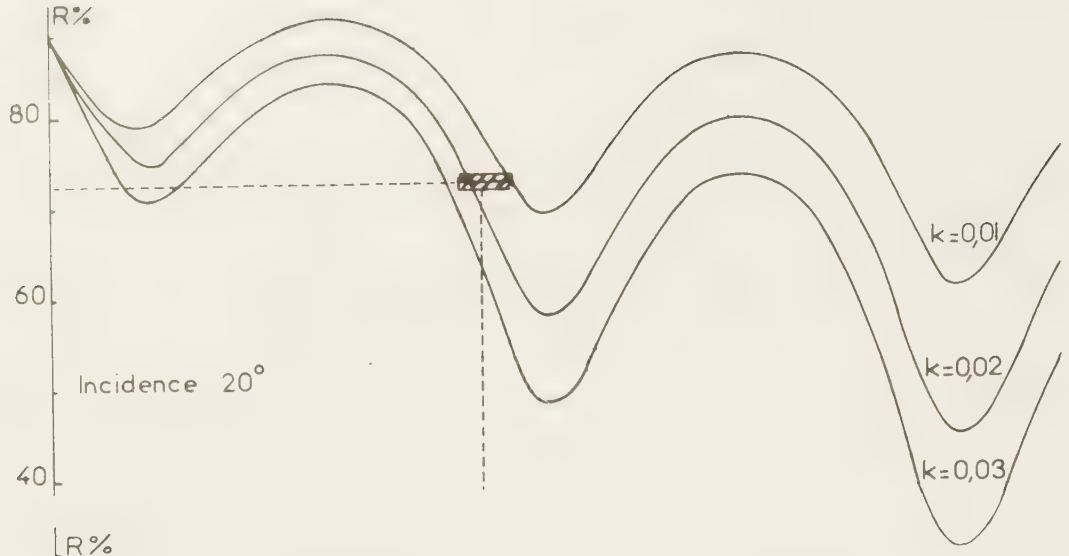


FIG - 97

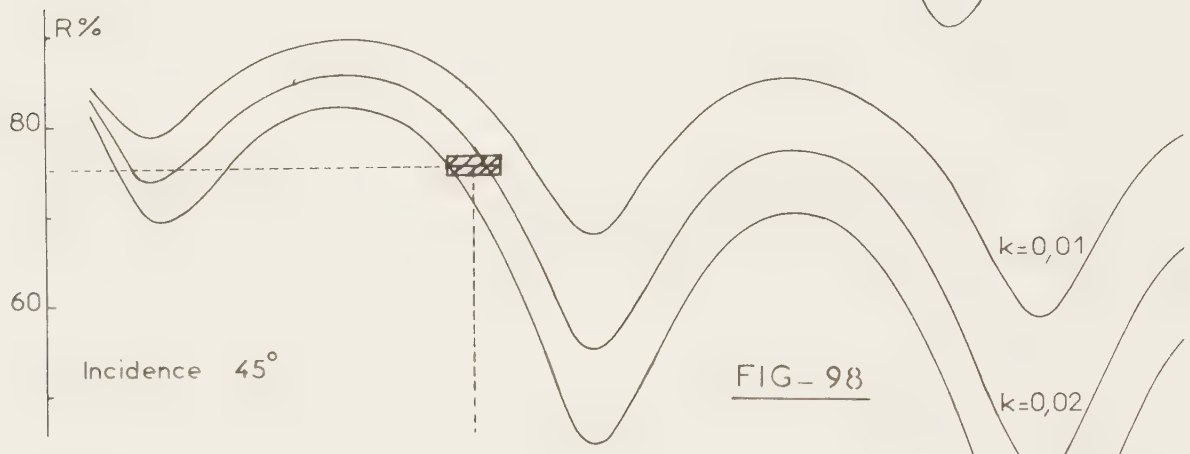


FIG - 98

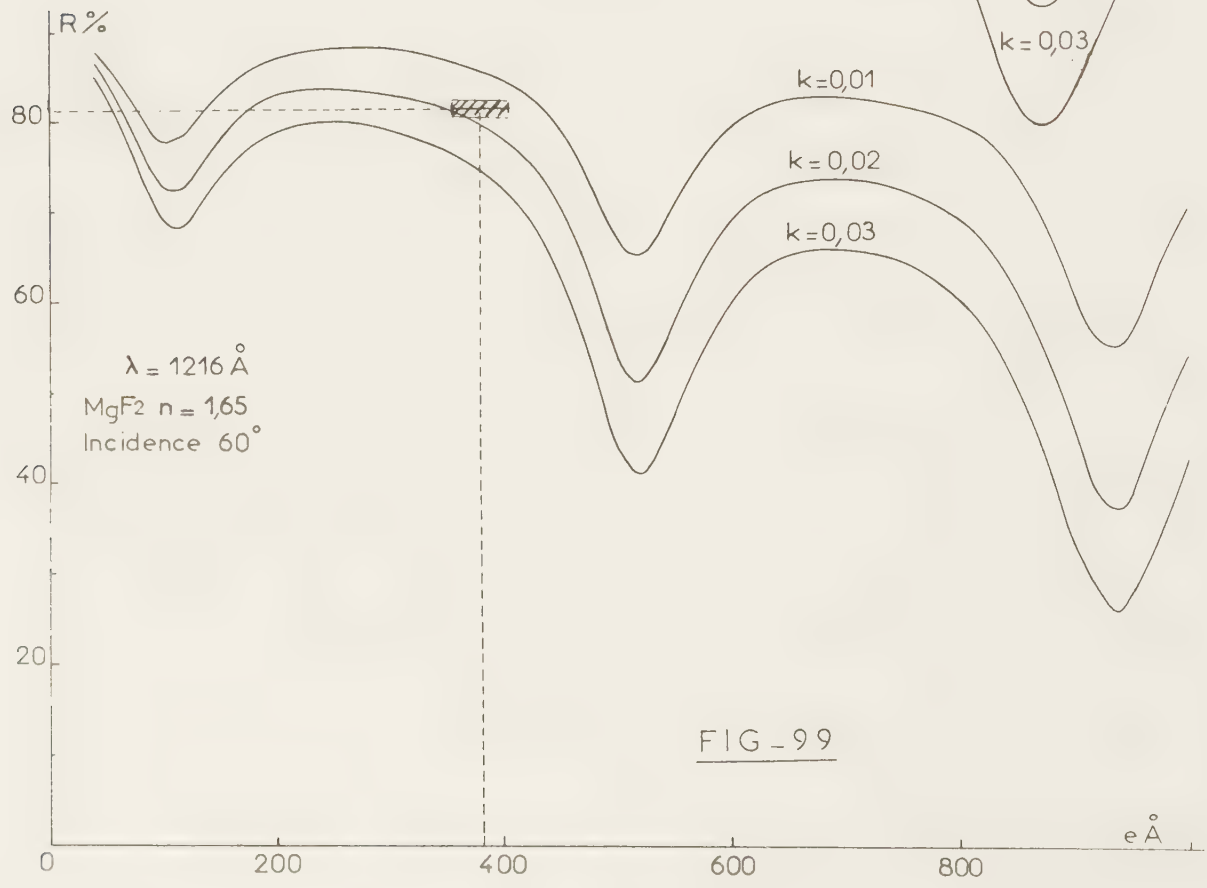


FIG - 99

teur de réflexion dans l'ensemble de la région spectrale correspondant aux longueurs d'onde inférieures à 1250 Å.

Couches rugueuses d'aluminium.

Dans l'étude précédente, nous n'avons pas tenu compte du plasmon de surface de l'aluminium et nous avons appliqué les équations de Fresnel établies au chapitre I. En vertu de la relation (*A.V,22*), la présence de fluorure de magnésium d'indice n_2 différent de l'unité doit déplacer vers les grandes longueurs d'onde l'excitation du plasmon de surface et introduire une erreur dans l'évaluation des constantes optiques du fluorure dans les domaines de λ voisin de 1600 Å et de 1200 Å, l'absorption sélective d'énergie due au plasmon ne se produisant plus à 1200 Å mais à 1600 Å. En conséquence, les constantes optiques de l'aluminium ne correspondent plus à celles que nous avons déterminées quand la surface d'aluminium baignait dans le vide. Ceci peut expliquer le maximum apparent sur la courbe (b) (fig. 101) représentant les valeurs de k_2 du MgF_2. Cependant le phénomène lié à la rugosité (du à la rugosité du support et de la couche d'aluminium) introduisant des variations de R à peine supérieures à la précision des mesures, et les mesures d'épaisseur du fluorure étant elles-mêmes entachées par une erreur non négligeable il nous est difficile de conclure sur cet exemple.

Par contre, en recouvrant des couches d'aluminium de rugosité importante par des diélectriques différents, nous pouvons voir sur les figures 102, 103, 104 que le déplacement du creux de réflexion observé (a) → (c) ne résulte pas uniquement de la composition d'indices entre la couche d'aluminium et la couche de fluorure superficielle (courbes (b)) mais qu'elle découle de la relation (*A.V,22*). Sur la figure 102, la courbe (a) correspond a une couche de 900 Å d'aluminium de rugosité induite par une sous couche de 500 Å de MgF_2, la courbe (b) représente les valeurs calculées, à l'aide des relations de Fresnel, du facteur de réflexion du dépôt précédent recouvert d'une épaisseur de 100 Å de MgF_2 (sans tenir compte de l'existence du plasmon de surface de l'aluminium). La courbe (c) est la courbe expérimentale observée après recouvrement du dépôt d'aluminium rugueux par une couche de MgF_2 de 100 Å d'épaisseur. Les résultats d'une

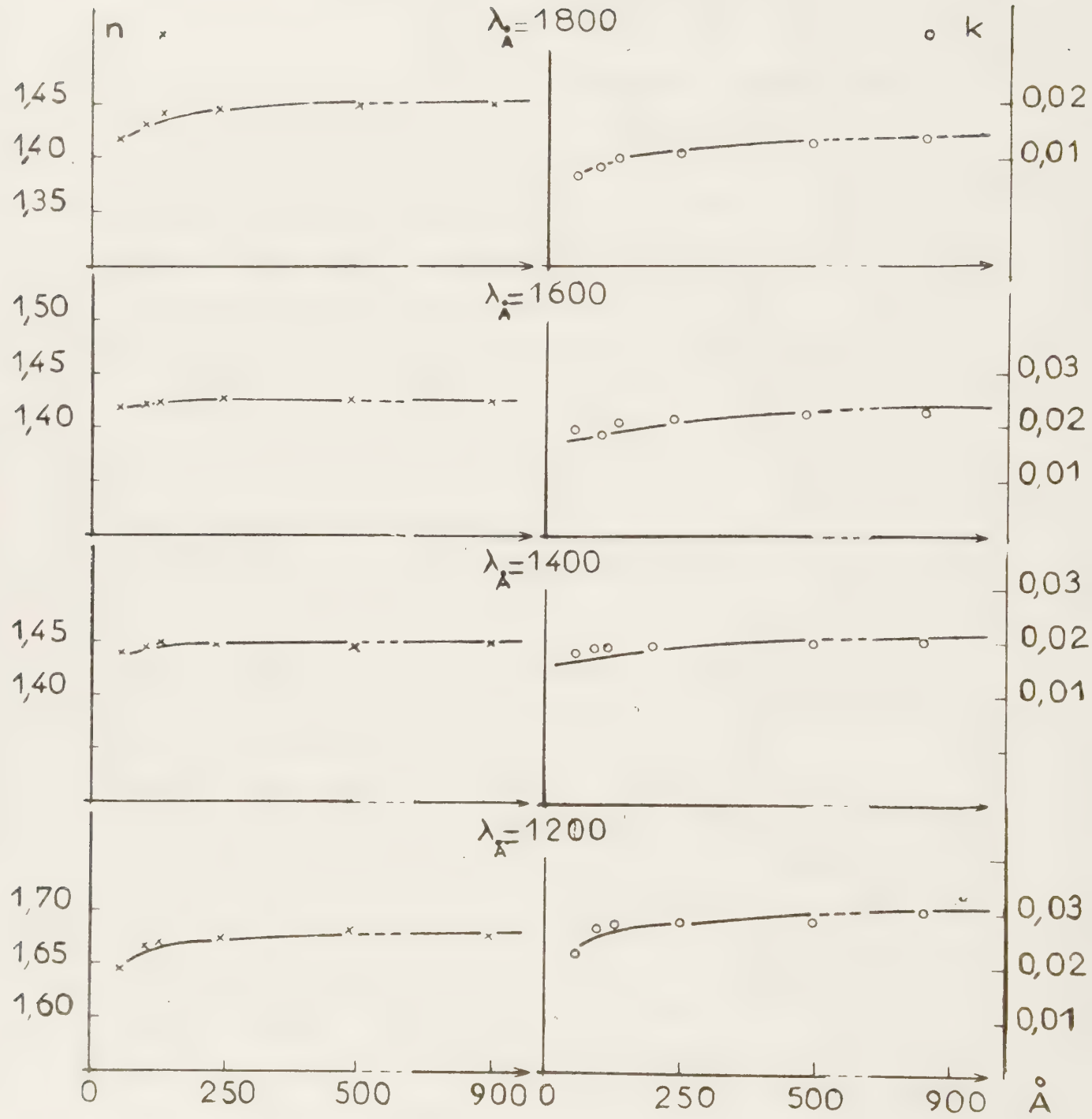

n
k
λ Å = 1800
1,45
1,40
1,35
0,02
0,01
λ Å = 1600
1,50
1,45
1,40
0,03
0,02
0,01
λ Å = 1400
1,45
1,40
0,03
0,02
0,01
λ Å = 1200
1,70
1,65
1,60
0,03
0,02
0,01
0
250
500
900
0
250
500
900
Å

Fig. 100

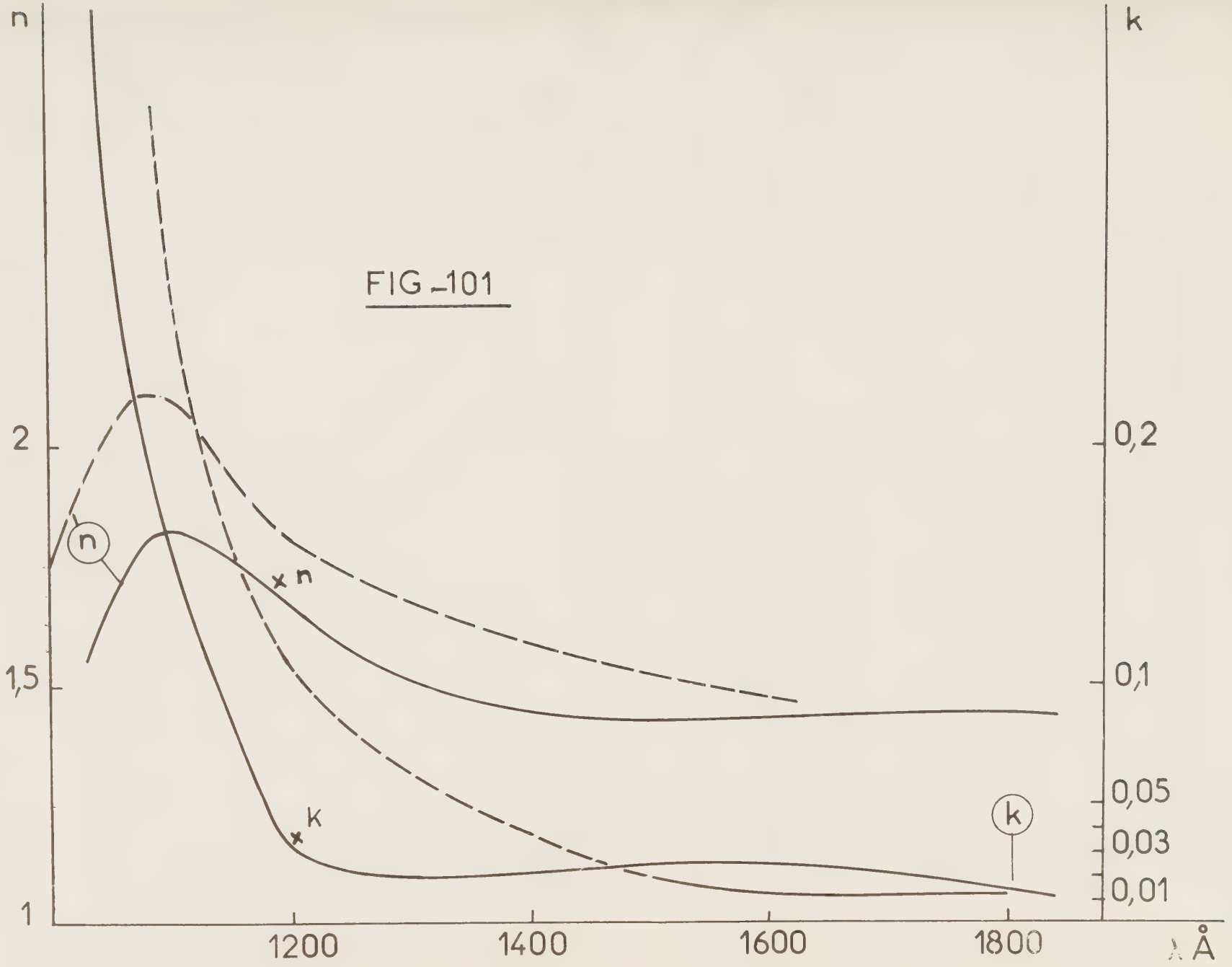


FIG -101

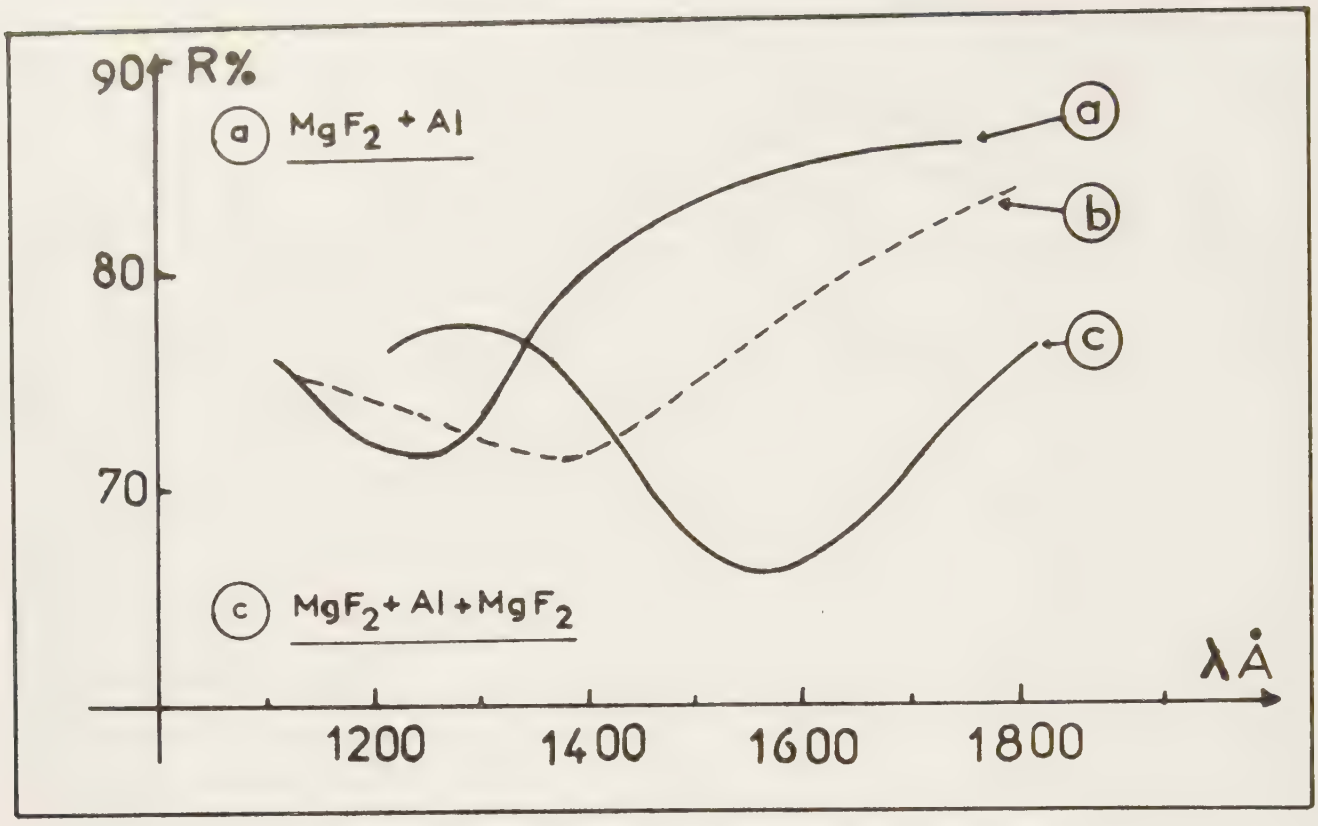


FIG-102

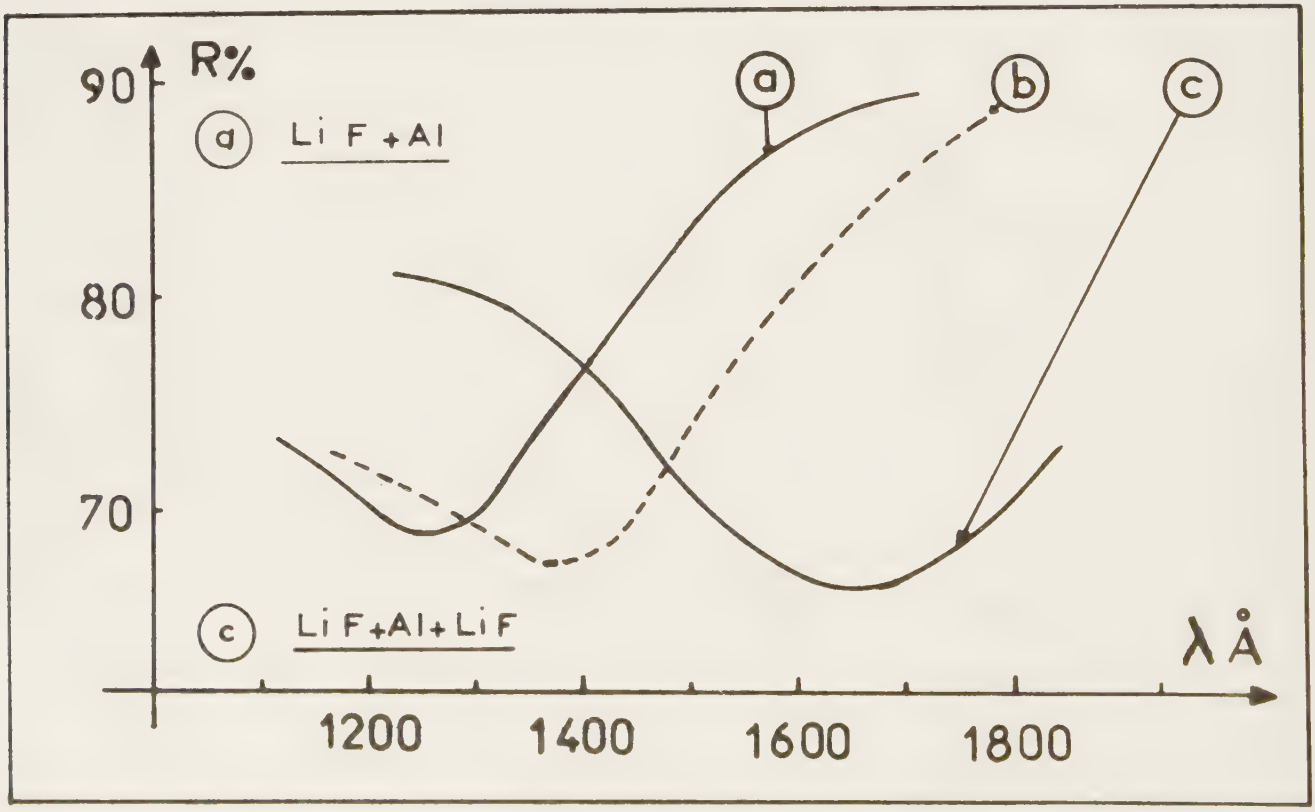


FIG-103

étude semblable concernant une couche d'aluminium de rugosité induite par une épaisseur de LiF de 500 Å (a), puis recouverte par 100 Å de LiF sont indiqués sur la figure 103 (c). Enfin, une couche d'aluminium de rugosité provoquée par un dépôt préalable de CaF_2 d'épaisseur de 1750 Å présentant un pouvoir réflecteur en fonction de λ indiqué par la courbe (a), figure 104, possède lorsqu'on la recouvre d'une couche de LiF de 100 Å, un facteur de réflexion donné par la courbe (c), figure 104. Ces dernières mesures sont comparables aux résultats obtenus par FEUERBACHER |66| pour une couche d'aluminium déposée pour une épaisseur de 1000 Å de CaF_2 puis recouverte d'une épaisseur de LiF de 50 Å.

Dans tous les cas examinés ci-dessus, c'est l'influence dépolarisante du diélectrique superficiel qui provoque le déplacement observé. Ce déplacement correspondant, comme on peut le vérifier sur les figures 102-103-104, à un déplacement de la fréquence de résonance suivant la relation $\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon}}$ (A,V.25).

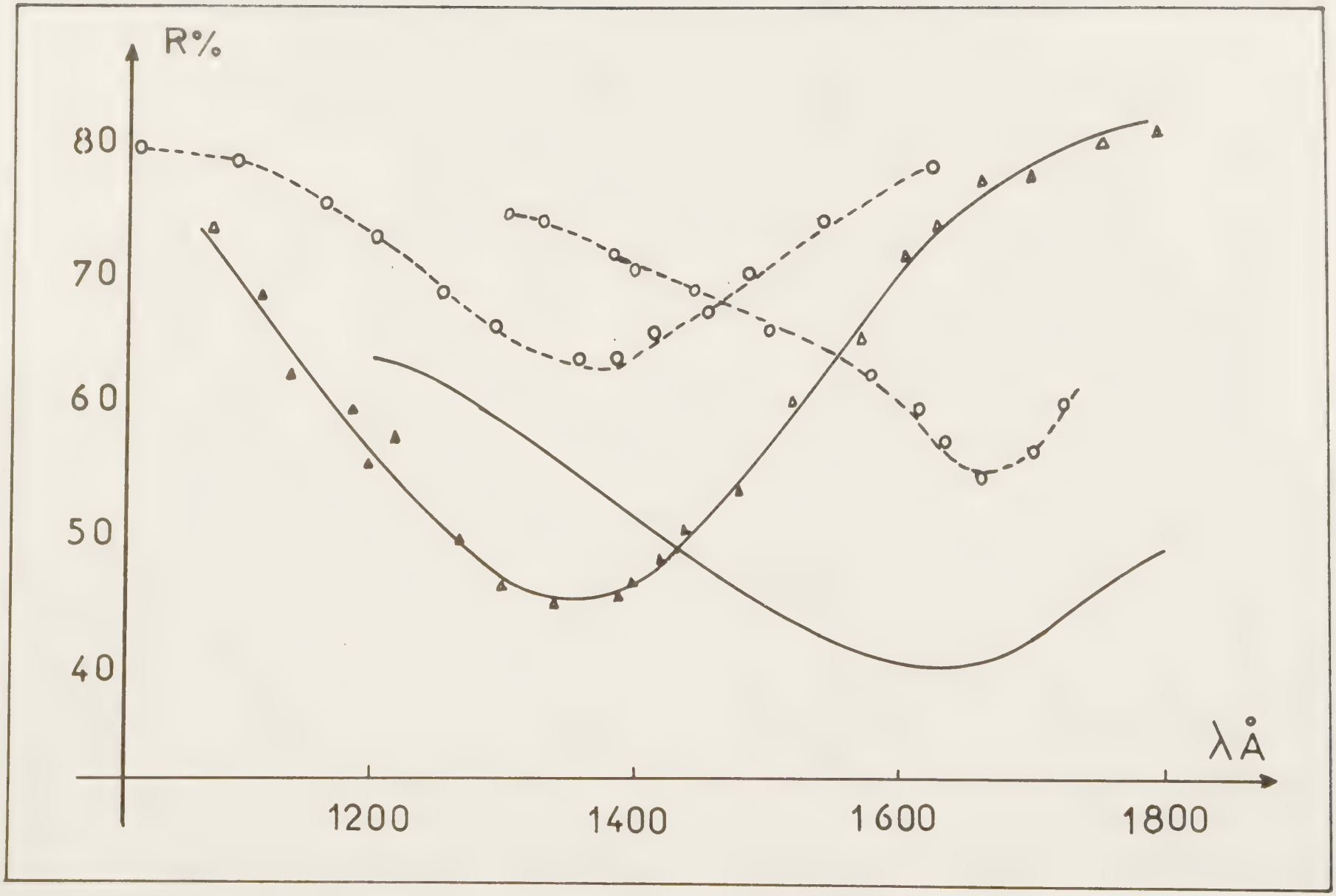


FIG-104

CONCLUSION -

Pour procéder à des mesures optiques dans l'ultraviolet (500 Å < λ < 2500 Å) sur des surfaces propres préparées par évaporation sous ultra-vide, nous avons été amenés à réaliser deux dispositifs de mesures complémentaires ; le premier utilisable dans le domaine de longueurs d'onde comprises entre 2500 et 1100 Å, le second employé pour le domaine 500 - 1300 Å. La mise au point de ces appareils nous a conduit à trouver des solutions originales à certains problèmes posés par les contraintes de l'ultra-vide et de l'ultra-violet. Ainsi, nous avons réalisé :

a) des joints d'un type nouveau (joint mixte aluminium-indium) permettant d'adapter des fenêtres de LiF sur des embases en acier inoxydable.

b) une vanne à voie droite de faible encombrement, isolant l'enceinte à ultra-vide (pendant les périodes d'étuvage).

c) un dispositif comprenant six quartz piézoélectriques refroidis à l'eau.

d) un passeur d'échantillons limitant le nombre d'opérations longues et coûteuses (nettoyages, étuvages, réglages optiques ...).

e) une lampe de type Penning fonctionnant avec un gaz à faible pression (3.10^{-2} torr) évitant les remontées de pression dans l'enceinte à ultra-vide. Tous ces accessoires devaient en particulier pouvoir supporter des températures comprises entre 200 et 300 degrés Celsius. Nous avons également amélioré les performances d'un détecteur commercial en étendant sa zone de mesures vers les grandes longueurs d'onde et mis au point une technique d'observation des défauts de surfaces à l'aide d'un microscope électronique.

Dans la région spectrale explorée, les corps examinés présentant une zone d'absorption assez forte, nous avons utilisé plusieurs méthodes de calcul pour déterminer leurs propriétés optiques ; méthodes de Tousey et de Kramers Kronig dans la zone de forte réflexion ; méthodes de l'angle critique et de composition d'indices dans la région de transparence.

A partir des constantes optiques, nous avons évalué les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique de l'aluminium et du magnésium, ceci nous a permis de comparer nos valeurs expérimentales aux modèles théoriques de *DRUDE, de COHEN, de EHRENREICH, de PINES*, d'une part

et aux mesures des pertes d'énergies des électrons, d'autre part. Nos résultats ont permis de mettre en évidence pour la première fois l'excitation d'un plasmon de surface par un rayonnement électromagnétique (magnésium). Cette excitation n'étant pas permise dans le cas de couches parfaitement planes, nous avons, à partir du pouvoir réflecteur, déterminé les paramètres caractéristiques (rugosité σ et longueur d'autocorrélation a) des défauts de surface de couches d'Al et de Mg de rugosité induite par les supports, ou par des sous-couches diélectriques de natures différentes.

En raison de l'amélioration des techniques d'observation et de la précision des mesures des phénomènes secondaires en apparence, puisqu'ils sont généralement considérés comme négligeables (diffusion, homogénéité des milieux, plasmons), devront être pris en considération avant l'interprétation des résultats expérimentaux dans le cadre de la physique du solide. Ainsi, notre étude concernant également l'observation de couches superposées (diélectrique, métal, diélectrique) montre que l'influence combinée de la rugosité et de l'action dépolarisante du diélectrique ne permet plus dans le domaine de l'ultra-violet d'appliquer les relations de Fresnel pour prévoir les qualités des dépôts ou pour en déduire leurs propriétés.

Une théorie récente d'*ELSON et RITCHIE* |136| pose cependant les bases d'une interprétation plus proches des modèles réels. Elle permet surtout de tenir compte des défauts superficiels pour décrire l'interaction *rayonnement-surface*.

Pour notre part, nous souhaitons pouvoir poursuivre l'étude des surfaces réelles dans le domaine spectral de l'ultraviolet lointain, car nous pensons que certaines difficultés concernant cette région peuvent être levées :

a) par l'utilisation d'une source stable, continue et puissante, telle que celle dont dispose les chercheurs de DESY, de FRASCATTI ou de WISCONSIN, source permettant des mesures rapides et précises.

b) par une étude systématique des accessoires d'optique utilisés en réflexion (réseaux, miroirs, filtres, polariseurs) afin de connaître l'état de polarisation de la lumière incidente sur les dépôts observés et les caractéristiques optiques des appareils au moment des mesures.

ANNEXE I

```
ZZJOB 5
ZZFORX52
C      LABORATOIRE DE SPECTROSCOPIE FAC SCIENCES RENNES
C      PROGRAMME POUR TROUVR LES CONSTANTES OPTIQUES
C      A PARTIR DU SPECTRE DE REFLEXION
C      METHODE DE KRAMERS KRONIG
C      LES C(I) SONT LES LONGUEURS D,ONDE OU L,ON CALCULE T N ETK
C      LES V(J) SONT LES LONGUEURS D ONDE DES EXTEMITES DES INTERVALLES
C      DE DECOMPOSITION DE LA COURBE R
C      LES PV(J) SONT LES POURCENTAGES DE REFLEXION AUX POIMTS V(J)
C      LES E(I) SONT LES VALEURS DE L ENERGIE CORRESPONDANT AUX C(I)
       DIMENSION C(150),V(200),PV(200),E(150),T(150)
       READ1,IMAX,JMAX
       READ2,(C(I),I=1,IMAX)
       READ2,(V(J),J=1,JMAX)
       READ3,(PV(J),J=1,JMAX)
       DO 10 I=1,IMAX
       SOM=0
       J=1
       E(I)=12397.8/C(I)
    20 X=V(J)/C(I)
       FON1=(1.+X)*LOG(1.+X)+(1.-X)*LOG(ABSF(1.-X))
       J=J+1
       Y=V(J)/C(I)
       FON2=(1.+Y)*LOG(1.+Y)+(1.-Y)*LOG(ABSF(1.-Y))
       SOM=SOM+0.5*(LOG(PV(J-1))-LOG(PV(J)))/(V(J)-V(J-1))*(FON2-FON1)
       IF(J-JMAX)20,30,30
    30 T(I)=(-1./3.1415926)*C(I)*SOM
    10 PUNCH9,C(I),E(I),T(I)
     1 FORMAT (2I5)
     2 FORMAT (7F10.0)
     3 FORMAT (7F10.4)
     9 FORMAT(1X,F7.0,1X,F8.3,7X,F11.6)
       END
```

```
ZZJOB 5
ZZFORX52      PROGRAMME D'AJUSTAGE
      READ1,TETA1,TETA2,AMBDA1,AMBDA2,R1,R2
      READ2,AN1,AN2
    1 FORMAT(2F11.6,2F10.0,2F6.4)
    2 FORMAT(2F10.4)
      RO1=SQRTF(R1)
      RO2=SQRTF(R2)
      CST1=(AN1+(AN1*R1)-1.+R1)/(2.*RO1*AN1)
      CST2=(AN2+(AN2*R2)-1.+R2)/(2.*RO2*AN2)
      TGT1=SQRTF((1./(CST1*CST1))-1.)
      TGT2=SQRTF((1./(CST2*CST2))-1.)
      T1=-ATANF(TGT1)
      T2=-ATANF(TGT2)
      A=(T1-T2-TETA1+TETA2)/(AMBDA1-AMBDA2)
      B=T1-TETA1-(A*AMBDA1)
      TETAP2=(A*AMBDA2)+B-T2
      PUNCH3,A,B
    3 FORMAT(2E20.0)
      PUNCH4,TETAP2
    4 FORMAT(20HVERIFICATION,TETAP2=,E20.0)
      END
                                        22
```

```
C      PROGRAMME FINAL KRAMERS-KRONIG
C      LABO SPECTRO FAC SCIENCES RENNES
C      LES PC(I) SONT LES POURCENTAGES DE REFLEXION(R) AUX POINTS C(I)
       DIMENSION T(150),PC(150),D(150),F(150),ALP(150),C(150)
       DIMENSION E(150),SIG(150),OMS(150)
       READ 1,IMAX
       READ 2,(C(I),E(I),T(I),I=1,IMAX)
       READ 3,A,B
       READ 4,(PC(I),I=1,IMAX)
       READ19,CEL
       PUNCH 5
       PUNCH 51
       DO 100 I=1,IMAX
       V=T(I)+A*C(I)+B
       S=SQRTF(PC(I))
       R=COSF(V)
       PN=(1.-PC(I))/(1.+PC(I)-2.*S*R)
       PK=(-2.*S*SINF(V))/(1.+PC(I)-2.*S*R)
       D(I)=PN**2-PK**2
       F(I)=2.*PN*PK
       ALP(I)=4.*3.1415926*PK/C(I)
       PER=(2.*PN*PK)/((PN**2+PK**2)**2)
       SIG(I)=0.5*F(I)*CEL/C(I)
       OMS(I)=3.1415926*F(I)*(CEL/C(I))**2
       PUNCH 6
  100  PUNCH 7,C(I),E(I),V,PN,PK,PER
       PUNCH 6
       PUNCH 9
       PUNCH 13
       DO 200 I=1,IMAX
       PUNCH 12
  200  PUNCH 10,E(I),D(I),F(I),ALP(I),SIG(I),OMS(I)
       PUNCH 12
    1  FORMAT(1I5)
    2  FORMAT(1X,F7.0,1X,F8.3,7X,F11.6)
    3  FORMAT(2E20.0)
    4  FORMAT(7F10.4)
   19  FORMAT(E10.0)
    5  FORMAT(25X,19HCONSTANTES OPTIQUES//80(1H*))
   51  FORMAT(1H*,1X,6HLAMBDA,1H*,5X,1HE,4X,1H*,5X,4HTETA,5X,1H*,6X,1HN,7
      1X,1H*,6X,1HK,7X,1H*,4X,5HPERTE,5X,1H*)
    6  FORMAT(80(1H*))
    7  FORMAT(1H*,F7.0,1H*,F8.3,2X,1H*,4(2X,F10.6,2X,1H*))
    9  FORMAT(//25X,19HCONSTANTES OPTIQUES//80(1H*))
   10  FORMAT(1H*,F7.3,1H*,3(1X,F12.6,1H*),2(1X,E12.0,1H*))
   12  FORMAT(80(1H*))
   13  FORMAT(1H*,3X,1HE,3X,1H*,4X,5HN2-K2,4X,1H*,4X,3H2NK,6X,1H*,3X,5HAL
      1PHA,5X,1H*,3X,5HSIGMA,5X,1H*,3X,5HOMSIG,5X,1H*)
       END
```

ANNEXE II (PROGRAMME)

```
      DIMENSION TO(3),TEO(3),ACO(3),ASI(3),ASI2(3)
      DIMENSION QS2I(3),QSI(3),PSI(3)
      DIMENSION RT(3)
       DIMENSION AND(10),AKD(10),EP(5)
      COMMON PI,ANS,AKS,AMBDA,R20SN,ANS2,AKS2,ANSAKS,AS,CS,DS
      COMMON TO,TEO,ACO,ASI,ASI2
      COMMON QS2I,QSI,PSI
      COMMON RT,KMAX
      COMMON IMAX,JMAX,LMAX,EPL,RAS,ANDI,AKDI,PAS,QAS,AND,AKD,EP
      PI=3.1415926
      PI180=PI/180.
   40 READ 1,KMAX,IMAX,JMAX,LMAX
      READ 2,(TO(K),K=1,KMAX)
      READ3,ANS,AKS,AMBDA,R20SN
      READ 26,EPL,RAS
      READ12,ANDI,AKDI,PAS,QAS
      EP(1)=EPL
      AND(1)=ANDI
      AKD(1)=AKDI
      DO 50 L=2,LMAX
   50 EP(L)=EP(L-1)+RAS
      DO 51 I=2,IMAX
   51 AND(I)=AND(I-1)+PAS
      DO 52 J=2,JMAX
   52 AKD(J)=AKD(J-1)+QAS
      ANS2=ANS**2
      AKS2=AKS**2
      ANSAKS=ANS*AKS
      AS=ANS2-AKS2
      CS=4.*ANSAKS**2
      DS=ANS2+AKS2
      DO110 I=1,3
      SOAP=TO(I)*PI180
      TEO(I)=SOAP
      ACO(I)=COS(SOAP)
      ASI(I)=SIN(SOAP)
      ASI2(I)=ASI(I)**2
      BS=AS-ASI2(I)
      DEL=BS**2+CS
      RADEL=SQRT(DEL)
      IF(BS)101,102,101
  101 QS2I(I)=-0.5*(BS-RADEL)
      GO TO 1001
  102 QS2I(I)=ANSAKS
 1001 QSI(I)=SQRT(QS2I(I))
      PSI(I)=ANSAKS/QSI(I)
  110 CONTINUE
      DO 53L=1,LMAX
      PUNCH 5
      PUNCH 6
      PUNCH 7,AMBDA,ANS,AKS,R20SN,EP(L)
      TO 1=TO(1)
      TO 2=TO(2)
      TO 3=TO(3)
      PUNCH 8,TO(1),TO(2),TO(3)
      DO 54 I=1,IMAX
      DO 55 J=1,JMAX
      CALL FUNSAV (AND(I),AKD(J),EP(L))
   55 PUNCH 9,AND(I),AKD(J),RT(1),RT(2),RT(3)
```

```
54 PUNCH 15
53 CONTINUE
 1 FORMAT(4I5)
 2 FORMAT(7F10.4)
 3 FORMAT(4F10.4)
 5 FORMAT(17X,21H POUVOIRS REFLECTEURS)
 6 FORMAT(///,8X,6HLAMBDA,7X,2HN2,8X,2HK2,5X,6HR2OSNU,4X,9HEPAISSEUR)
 7 FORMAT(6X,4F10.4,2X,F6.0)
 8 FORMAT(//6X,2HN1,9X,2HK1,9X,1HR,I2,8X,1HR,I2,8X,1HR,I2,//)
 9 FORMAT(1X,5(1H*,F10.4),1H*)
15 FORMAT(74(1H*),/)
26 FORMAT(2F6.0)
12 FORMAT(4F10.4)
   GO TO 40
   END
```

ANNEXE II (SOUS-PROGRAMME)

```
      SUBROUTINE FUNSAV(ANDI,AKDI,EPL)
      DIMENSION TO(3),TEO(3),ACO(3),ASI(3),ASI2(3)
      DIMENSION QS2I(3),QSI(3),PSI(3)
      DIMENSION RT(3)
      COMMON PI,ANS,AKS,AMBDA,R2OSN,ANS2,AKS2,ANSAKS,AS,CS,DS
      COMMON TO,TEO,ACO,ASI,ASI2
      COMMON QS2I,QSI,PSI
      COMMON RT,KMAX
      ANDI2=ANDI**2
      AKDI2=AKDI**2
      ANDAKD=ANDI*AKDI
      AD=ANDI2-AKDI2
      CD=4.*ANDAKD**2
      DO 500 I=1,KMAX
      SOAP=ASI2(I)
      BD=AD-SOAP
      QS2=QS2I(I)
      QS=QSI(I)
      PS=PSI(I)
      EL=BD**2+CD
      RAEL=SQRT(EL)
      IF(BD)201,202,201
  201 QD2=-0.5*(BD-RAEL)
      GO TO 2000
  202 QD2=ANDAKD
 2000 QD=SQRT(QD2)
      PD=ANDAKD/QD
       ACOI=ACO(I)
      E1=ACOI-PD
      E2=ACOI+PD
      DD=ANDI2+AKDI2
      E3=PD**2+QD2
      E4=PS**2+QS2
      CO2T1=E3/DD
      C1=SQRT(CO2T1)
      E5=PD-PS
      E6=QD-QS
      E10=PD+PS
      E11=QD+QS
      G2=2.*(QS*PD-QD*PS)
      G3=2.*ACOI*(PD*AD+2.*ANDAKD*QD)
      E7=ANDI*PS-AKDI*QS
      E8=AKDI*PS+ANDI*QS
      E9=2.*C1*(E7*AS+2.*ANSAKS*E8)
      SOAP=4.*PI*EPL/AMBDA
      GA=SOAP*QD
      BE=SOAP*PD
      H1=1./EXP(GA)
      AR1=(E1**2+QD2)/(E2**2+QD2)
      R1=SQRT(AR1)
      AR2=(E5**2+E6**2)/(E10**2+E11**2)
      R2=SQRT(AR2)
      SOAP=(DS**2)*CO2T1+DD*E4
      AR3=(SOAP-E9)/(SOAP+E9)
      R3=SQRT(AR3)
      SOAP=(DD*ACOI)**2+E3
      AR4=(SOAP-G3)/(SOAP+G3)
      R4=SQRT(AR4)
      AT1=2.*QD*ACOI/(ACOI**2-E3)
```

```
      TP1=ATAN(AT1)
      T1=PI+TP1
      AT2=G2/(E3-E4)
      T2=ATAN(AT2)
      IF(T2)301,3000,3000
  301 T2=T2+PI
 3000 AT4=2.*(QD*AD-2.*PD*ANDAKD)*ACOI/((DD*ACOI)**2-E3)
      TP4=ATAN(AT4)
      T4=TP4+PI
      AT3=2.*C1*(E8*AS-2.*ANSAKS*E7)/((DS**2)*CO2T1-DD*E4)
      T3=ATAN(AT3)
      IF(T3)401,4000,4000
  401 T3=T3+PI
 4000 H2=COS(T1-T2+BE)
      H3=COS(T1+T2-BE)
      SOAP1=AR2*(H1**2)
      SOAP2=2.*R1*R2*H1
      RPE=(AR1+SOAP1+H2*SOAP2)/(1.+AR1*SOAP1+H3*SOAP2)
      H4=COS(T4-T3+BE)
      H5=COS(T4+T3-BE)
      SOAP1=AR3*(H1**2)
      SOAP2=2.*R4*R3*H1
      RPA=(AR4+SOAP1+H4*SOAP2)/(1.+AR4*SOAP1+SOAP2*H5)
  500 RT(I)=(RPE+RPA)*0.5
      RETURN
      END
```

ANNEXE III

Le circuit de "vide" de l'ensemble de mesures représenté sur la figure 11 est schématisé par la figure 29.

I - RELATIONS UTILISEES.

Les calculs ayant permis la détermination des conductances et des vitesses de pompage des dispositifs installés sur les différentes enceintes, ont été effectués à partir de relations utilisées fréquemment en technique du vide [48] [50].

1 - Pression "P".

Dans le système C.G.S.

$P = n_1 k T$

P est la pression exprimée en baryes ;

n_1 représente le nombre de molécules dans l'unité de volume ;

k est la constante de Boltzman égale à : $1,38.10^{-16}$ erg. $°K^{-1}$;

T est la température absolue en °K.

L'unité de pression universellement utilisée en technique du vide est cependant :

le Torr ou millimètre de mercure.

A partir de la pression, on peut connaître le nombre de molécules existant dans un volume donné, par exemple :

sous une pression de 1 torr, le cm^3 contient $3,5.10^{16}$ molécules à la température de 20°C.

2 - Libre parcours moyen "Γ".

C'est la valeur moyenne du parcours d'une molécule entre deux chocs successifs.

Dans le système C.G.S., la valeur de Γ, établie à partir de la théorie cinétique des gaz, s'écrit :

$$\Gamma = \frac{kT}{\sqrt{2}\ \pi\ P\ \sigma^2}$$

σ étant le diamètre d'une molécule du gaz.

Les appareils de mesures indiquant les pressions en torr, la relation pratiquement utilisée est pour σ donné

$$\Gamma = \frac{5.10^{-3}}{P}$$

Γ est exprimée en cm, P est exprimé en torr.

Le libre parcours moyen sert à définir le régime d'écoulement d'un gaz.

Le régime est appelé *visqueux* si Γ est petit par rapport aux dimensions des enceintes et des ouvertures.

Le régime est *moléculaire* si Γ est grand.

A 10^{-3} torr par exemple : Γ = 5 cm.

3 - *Flux gazeux "Q". Vitesse de pompage "V".*

a) Le flux gazeux Q est le débit en volume ramené à la pression unité. L'unité principalement utilisée est le torr-litre par seconde ($T.L.s^{-1}$). On utilise aussi :

$$1\text{e } cm^3.atm.s^{-1} = \frac{1}{1,32}\ T.L.s^{-1}$$

$$1\text{e Lusec} = 10^{-3}\ T.L.s^{-1}$$

b) La vitesse de pompage V d'une pompe est définie par le rapport :

$$V = \frac{Q}{P}$$

où V, exprimée en $L.s^{-1}$, est la vitesse de pompage ;

Q est le flux gazeux aspiré ($T.L.s^{-1}$) ;

P est la pression au niveau d'aspiration de la pompe (en torr).

Les vitesses de pompage étant en général fonction de la pression, il est essentiel de donner la pression d'utilisation pour exprimer la vitesse de pompage.

Par exemple, dans notre installation :

- La pompe à diffusion d'huile a une vitesse de pompage V_1 égale à 650 $L.s^{-1}$ (au niveau d'aspiration dans le monochromateur) entre 10^{-4} et 10^{-6} T. A 10^{-7} torr, sa vitesse est d'environ 20 $L.s^{-1}$.

Pour l'air : Les vitesses de pompage des pompes ioniques à titane sont pratiquement constantes entre 10^{-10} et 10^{-4} torr.

: La vitesse de pompage d'une couche de titane fraîchement évaporée sur une paroi refroidie à la température de l'azote liquide est d'environ 10 $L.s^{-1}$ cm^2. Cette vitesse de pompage reste constante mais, suivant la pression, l'action de pompage d'une couche monomoléculaire de titane dure plus ou moins longtemps.

4 - *Conductance "C".*

Les canalisations servant à raccorder les différentes enceintes provoquent un freinage dans l'écoulement des molécules. Par analogie aux phénomènes électriques, on a défini, à partir de cette notion de résistance, une impédance Z et une conductance C des canalisations.

$$C = \frac{1}{2} \quad \frac{Q}{P_1 - P_2}$$

où C est la conductance en $L.s^{-1}$;

Q est le flux gazeux absorbé à la pression P_1 ;

P_1 est la pression amont ;

P_2 est la pression aval.

En associant à une pompe de vitesse de pompage V' une conductance C, on utilise, pour obtenir la vitesse de pompage effective V au niveau de l'enceinte, la relation :

$$\frac{1}{V} = \frac{1}{V'} + \frac{1}{C}$$

a) Conductance d'un orifice.

- En régime moléculaire, pour de l'air à 20° Celsius :

$$C = \frac{kT}{2\pi m} \cdot A$$

où C est la conductance en $cm^3.s^{-1}$;

m est la masse d'une molécule ;

A est la surface de l'orifice en cm^2.

Cette relation, établie dans le système C.G.S., est remplacée fréquemment par :

$$C = 11,6\ A$$

où C est exprimée en $L.s^{-1}$;

A est exprimé en cm^2.

- En régime visqueux, on emploie la formule :

$$C = 20\ A$$

où C est exprimée en $L.s^{-1}$;

A est exprimé en cm^2.

b) Conductance d'une canalisation cylindrique.

A partir de la conductance C_1, le régime d'écoulement est moléculaire. La relation utilisée pour le calcul des conductances longues ou courtes est :

$$C = 12,1 \frac{D^3}{L} \times \delta \times \alpha$$

où C est exprimée en $L.s^{-1}$;

D est le diamètre en cm de la canalisation ;

L est la longueur de la canalisation en cm ;

δ est le coefficient de viscosité du gaz ;

α est le facteur de Clausius dépendant du rapport L/D.

Quelques valeurs particulières de δ et α sont données dans le tableau ci-dessous :

$\delta = 1$	pour l'air	$\alpha = 1$	si	L/D =	100
$\delta = 1,9$	pour l'eau	$\alpha = 0,88$	si	L/D =	10
$\delta = 2,1$	pour l'hydrogène	$\alpha = 0,70$	si	L/D =	3
$\delta = 1,04$	pour l'azote	$\alpha = 0,43$	si	L/D =	1
$\delta = 0,82$	pour l'argon	$\alpha = 0,38$	si	L/D =	0,8

Quand la canalisation présente un coude, on utilise la relation :

$$C = 12,1 \frac{D^3}{L_{axial} + 1,33\ D}$$

où L_{axial} est la longueur de la canalisation réelle en cm ;

D est le diamètre de la canalisation en cm ;

C est la conductance en $L.s^{-1}$.

II - *DETERMINATION DES GRANDEURS CARACTERISTIQUES DU CIRCUIT DE VIDE DE NOTRE APPAREILLAGE*. (Fig. 11).

P_1 : pression du gaz dans la source de rayonnement, dépend du type de lampe utilisée.

P_1 = 1 torr environ quand on utilise la lampe à hydrogène sans fenêtre décrite au § II.1.2 a).

$P_1 = 3.10^{-2}$ torr environ si l'on emploie la lampe du type Penning (§ II.1.3 a).

$P_1 = 10^{-4}$ torr si l'on se sert d'une lampe à hydrogène avec fenêtre de fluorure de lithium.

P_2 : pression maintenue dans le monochromateur, résulte de l'équilibre entre le débit gazeux provenant de la source P_1 à travers la conductance de la fente d'entrée F_1 d'une part, et du volume gazeux absorbé par le système de pompage du monochromateur d'autre part.

P_3 et P_4 : de la même façon que P_2 dépendent des cnnductances C_2, C_3 et C_4 et des vitesses de pompage P_3 et P_4.

C_1, C_2, C_3 sont déterminées géométriquement par le flux lumineux minimum nécessaire pour effectuer les mesures optiques. Dans les conditions les plus défavorables (raies d'émission de la source de rayonnement de faible intensité), la fente d'entrée F_1 présente une ouverture rectangulaire de largeur égale à 0,1 mm et de hauteur constante égale à 12 mm. La

fente de sortie F_2 a la forme d'un rectangle de 12 mm de haut sur 0,20 mm de largeur ; le diaphragme C_3 offre une surface d'ouverture de 4,5 mm^2 environ.

Le régime d'écoulement gazeux à travers C_1 est *un régime visqueux*. Par contre, à travers C_2 et C_3, le régime d'écoulement est *moléculaire*. Dans ces conditions, les valeurs des conductances sont égales à :

$0,2\ L.s^{-1}$ pour C_1

$0,3\ L.s^{-1}$ pour C_2

$0,5\ L.s^{-1}$ pour C_3

C_4 et C_5 ont été réalisées pour représenter la plus grande conductance compatible avec les dimensions des enceintes sur lesquelles elles sont raccordées.

La forme de ces enceintes a été déterminée de manière à conserver entre la fente de sortie F_2 et le détecteur D (Fig. 12) une distance minimum favorable à la détection du rayonnement.

Ainsi, la canalisation C est un cylindre de longueur 12 cm et de diamètre 4 cm introduisant entre l'enceinte intermédiaire et la pompe ionique de 15 $L.s^{-1}$ une conductance égale à :

$$\left|12,1 \times \frac{(4)^3}{12} \times 0,7\right| \quad \text{soit environ } 45\ L.s^{-1}$$

La liaison entre l'enceinte de mesure et son dispositif de pompage est assurée par 2 cylindres identiques, de diamètre intérieur 10 cm et de longueur 8 cm, donnant une conductance totale de :

$$2 \times \left|12,1 \times \frac{(10)^3}{8} \times 0,38\right| \quad \text{soit environ } 1140\ L.s^{-1}$$

V_1 : vitesse de pompage dans le monochromateur, est égale à 650 $L.s^{-1}$ entre 10^{-4} et 10^{-5} torr (valeur donnée par le constructeur).

V_2 : vitesse de pompage au niveau de l'enceinte intermédiaire, dépend de la vitesse de pompage de la pompe ionique (15 $L.s^{-1}$) associée à un sublimateur de titane de vitesse de pompage égale à 50 $L.s^{-1}$;

la conductance C_4, définie précédemment, est égale à 45 $L.s^{-1}$.

La vitesse en V_2 est ainsi déterminée par :

$$\frac{1}{V_2} = \frac{1}{65} + \frac{1}{45} \text{ , soit } V_2 \simeq 25 \text{ } L.s^{-1}$$

V_3 : représente la vitesse de pompage effective au niveau de l'enceinte de mesures de l'ensemble formé par la pompe ionique de vitesse de pompage égale à 140 $L.s^{-1}$ et d'un sublimateur de titane sur paroi refroidie à la température de l'azote liquide. Le titane étant sublimé sur un cylindre de diamètre 30 cm environ et de hauteur 30 cm nous fournit une vitesse de pompage égale à :

$$(2\pi \times 15 \times 30 \times 10) \text{ } L.s^{-1} \text{ soit environ } 28.000 \text{ } L.s^{-1}$$

La vitesse effective est en fait limitée par la conductance C_5 à :

$$V_3 = 1140 \text{ } L.s^{-1}$$

III - PRESSIONS ATTEINTES EN REGIME DYNAMIQUE.

Nous ne tenons pas compte des dégazages des parois. La seule source de gaz est constituée par le gaz de la source de rayonnement.

1 - Pression limite calculée en utilisant la lampe à hydrogène sans fenêtre.

P_1 = 1 torr environ
C_1 = 0,2 $T.L.s^{-1}$

Le flux gazeux Q_1 fourni par la source dans le monochromateur est :

$$Q_1 = P_1 C \quad \text{soit} \quad 0,2 \text{ } T.L.s^{-1}$$

P_2 est donc égale à $\frac{Q}{S}$, soit $\frac{0,2}{650} \simeq 3.10^{-4}$ torr

De la même façon, nous obtenons :

$$P_3 = \frac{0,3 \times 3.10^{-4}}{25} \simeq 4.10^{-6} \text{ torr}$$

$$P_4 = \frac{0,5 \times 4.10^{-6}}{1140} \simeq 2.10^{-2} \text{ torr}$$

2 - *Pression limite calculée en utilisant la source de type Penning décrite au chapitre II.*

La pression P_1 dans la lampe est environ égale à 3.10^{-2} torr.

En procédant comme précédemment, nous avons successivement :

$$P_2 = \frac{0,2 \times 3.10^{-2}}{650} \simeq 9.10^{-6} \text{ torr}$$

$$P_3 = \frac{0,3 \times 9.10^{-6}}{25} \simeq 1.10^{-7} \text{ torr}$$

$$P_4 = \frac{0,5 \times 1.10^{-7}}{1140} \simeq 5.10^{-11} \text{ torr}$$

ANNEXE IV

Les paramètres décrivant l'interaction entre les ondes électromagnétiques et les milieux qu'elles rencontrent sont :

pour le milieu : $\hat{\varepsilon}$ sa constante diélectrique et $\hat{\sigma}$ sa conductivité

pour l'onde : $\vec{K}$ son vecteur d'onde et ω sa fréquence angulaire.

Nous rappelons brièvement les principales relations établies suivant les modèles théoriques choisis pour décrire cette interaction, le système employé étant le système C.G.S.

I - THEORIE MACROSCOPIQUE.

Les milieux (couches minces) étudiés sont supposés isotropes, homogènes. Les lois de la propagation sont déduites

a) *des relations de Maxwell*, | 1 | | 2 |.

$$\text{rot } \vec{H} = \frac{\hat{\varepsilon}}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + 4\pi\sigma\vec{z} \qquad 1.$$

$$\text{rot } \vec{E} = \frac{\mu}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \qquad 2.$$

$$\text{div } \vec{B} = 0 \qquad 3.$$

$$\text{div } \vec{E} = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon} \qquad 4.$$

IV,4 pour un milieu non chargé s'écrirait | 1 | $\text{div } \vec{E} = 0$

b) *des relations de continuités à la séparation de 2 milieux.*

Si $\vec{E}_A$ représente le vecteur champ électrique dans le milieu A de constante diélectrique $\hat{\varepsilon}_A$ et

$\vec{E}_B$ le vecteur champ électrique dans le milieu B de constante diélectrique $\hat{\varepsilon}_B$,

nous avons en choisissant le plan de séparation des 2 milieux pour plan yOx et la direction positive z dirigée du deuxième milieu vers le premier milieu (fig. IV,1).

$$\vec{E}_{A,x} = \vec{E}_{B,x} \qquad 5.$$

$$\vec{E}_{A,y} = \vec{E}_{B,y} \qquad 6.$$

$$\varepsilon_A . \vec{E}_{A,z} = \varepsilon_B . \vec{E}_{B,z} \qquad 7.$$

IV,1 et *IV,2* montrent qu'il y a propagation d'un champ électromagnétique. L'équation de propagation du champ électrique est :

$$\nabla^2 \vec{E} + \hat{\kappa} \vec{E} = 0 \qquad 8.$$

où

$$\hat{\kappa} = \frac{\omega^2}{c} \left(\varepsilon_A + i \frac{4\pi\sigma}{\omega}\right) \qquad 9.$$

$\hat{\kappa}$ est le vecteur complexe de propagation du champ dans le milieu.

Par analogie avec les lois de propagation dans un milieu transparent on définit :

une constante diélectrique complexe,

$$\hat{\varepsilon} = \varepsilon + i \frac{4\pi\sigma}{\omega} = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 \qquad 10.$$

un indice de réfraction complexe,

$$\hat{N} = \sqrt{\hat{\varepsilon}} = n - ik \qquad 11.$$

une vitesse de déplacement d'une onde dans ce milieu,

$$\hat{v} = \frac{c}{\sqrt{\hat{\varepsilon}}} \qquad 12.$$

Nous avons ainsi d'après *IV,11* :

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1 &= n^2 - k^2 \\ \varepsilon_2 &= 2nk \end{aligned}\right\} \qquad 13.$$

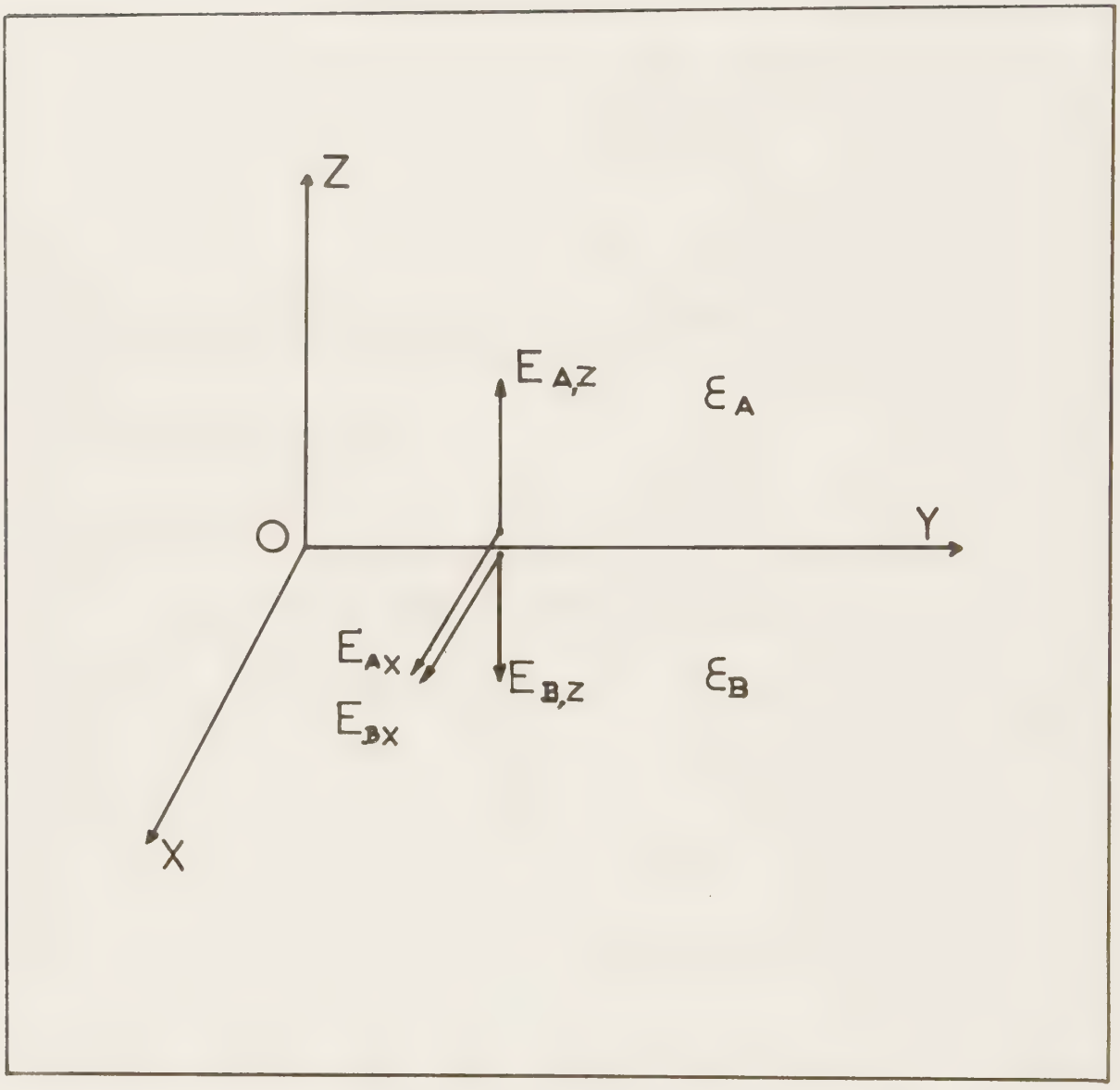


FIG-A,IV,1

La loi de variation de $\vec{E}$ en fonction du temps s'écrit :

$$E_x = E_o\, e^{-\kappa(\omega \frac{z}{c})} \cdot e^{i\omega(t - n\frac{z}{c})} \qquad 14.$$

La partie réelle de l'exponentielle étant liée à l'absorption d'énergie, nous pourrons relier les résultats d'expériences de transmission et de réflexion en considérant que l'énergie de l'onde est dissipée par effet Joule dans le milieu.

Si P est la puissance dissipée par effet Joule,

$\vec{j} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$ la densité de courant dans le conducteur non chargé, l'énergie dissipée correspondant à la partie réelle de P est |81| :

$$R_e\, P = -\omega\, |\epsilon_2|\, |\vec{E}|^2 \qquad 15.$$

En appelant α le coefficient d'absorption correspondant à la diminution d'intensité de l'onde par unité de longueur traversée, nous avons :

$$\alpha = -\frac{\partial E^2}{E^2} \cdot \frac{1}{\partial z} = \frac{2\kappa\omega}{c} = \frac{4\pi\kappa}{\lambda} \qquad 16.$$

l'intensité transmise par un échantillon d'épaisseur x et de coefficient d'absorption α est :

$$I = I_o e^{-\alpha x} \qquad \text{si } I_o \text{ est l'intensité initiale.}$$

II - THEORIE MICROSCOPIQUE CLASSIQUE. |75|

1 - Modèle de l'électron libre.

On considère dans ce modèle que les électrons de valence du métal peuvent se déplacer librement dans le potentiel - supposé constant - créé par les ions du réseau. Ces électrons sont seulement soumis, lorsqu'ils se déplacent à des forces de frottements proportionnelles à leur vitesse.

Les caractéristiques du milieu sont ainsi liées au nombre de porteurs de charge libres par unité de volume et au temps de relaxation τ

(ou temps de collision) |76|.

L'équation du mouvement d'un électron soumis à un champ $\vec{E}$ si m est la masse de l'électron

$\gamma = \frac{\partial^2 x}{\partial t^2}$ l'accélération $v = \frac{dx}{dt}$ sa vitesse

$\vec{F} = -\vec{eE}$ la force à laquelle il est soumis

$\vec{v}$ étant la vitesse acquise par l'électron quand on applique le champ $\vec{E}$

$$m\vec{\gamma} = \vec{F} - m\frac{\vec{v}}{\tau} \qquad \text{est} \qquad m\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{\tau}\right)\vec{v}(t) = -e\vec{E} \qquad 17.$$

$m\frac{\vec{v}}{\tau}$ correspond à la force de frottement qui s'exerce sur l'électron pendant le temps de relaxation τ.

Le déplacement des électrons produit un courant $\vec{i}$, en appliquant la loi d'Ohm

$$\vec{j} = \sigma \cdot \vec{E} \qquad 18.$$

où j est la densité de courant et σ la conductivité du milieu.

On a : *a) En régime continu,*

$$\vec{j} = n \cdot e \cdot \vec{v} \qquad 19.$$

n étant le nombre d'électrons par unité de volume.

La conductivité en courant continu s'écrit

$$\sigma_o = \frac{n \cdot e^2 \tau}{m} \qquad 20.$$

b) En régime sinusoïdal, pour un champ électrique $E(t) = Ee^{-i\omega t}$ de fréquence angulaire ω, en supposant que la vitesse obéit également à une loi de la forme $v(t) = v.e^{-i\omega t}$ |77|.

IV,17 a comme solution :

$$v = \frac{e\tau}{m} \cdot \frac{1}{1 - i\omega\tau} \cdot E$$

La conductivité $\hat{\sigma}(\omega)$ s'écrit :

$$\hat{\sigma}(\omega) = \frac{ne^2}{m\omega^2\tau} + i\,\frac{ne^2}{m\omega} \qquad 21.$$

2 - *Constante diélectrique.*

L'équation du mouvement d'un électron soumis à des collisions de temps τ et à un champ sinusoïdal E(t) étant d'après *(IV.17)*

$$m\,\frac{d^2x}{dt^2} = -\,eE - \frac{m}{\tau}\cdot\frac{dx}{dt}$$

comme la polarisation $P = -\,nedx$

que $\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P}$ et $\vec{D} = \varepsilon\vec{E}$

on a

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{4\pi ne^2}{m}\cdot\frac{1}{\omega^2 + i\omega\tau^{-1}} \qquad 22.$$

en posant

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi ne^2}{m} \quad \text{et} \quad \varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\,\varepsilon_2(\omega) \qquad 23.$$

nous avons

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1 &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \tau^{-2}} \\ \varepsilon_2 &= \frac{1}{\omega^2\tau}\cdot\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \tau^{-2}} \end{aligned}\right\} 24.$$

Dans notre domaine spectral de mesure (500 Å < λ < 2500 Å) comme $\omega\tau >> 1$ pour l'aluminium et le magnésium, nous pouvons remplacer *IV,22* par

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \qquad 25.$$

Les ondes électromagnétiques ne pouvant se déplacer que dans des milieux de constante diélectrique positive et réelle, pour $\omega = \omega_p$

nous définissons une longueur d'onde λ_c appelée longueur d'onde critique :

$$\lambda_c = \frac{2\pi c}{\omega_p}$$

Pour les longueurs d'onde du rayonnement incident inférieures à λ_c la lumière pourra se déplacer dans le milieu, par contre pour les longueurs d'onde supérieures à λ_c il y aura réflexion totale du rayonnement.

Ainsi pour l'aluminium, en considérant 3 électrons de valence libres, en prenant pour densité de ce matériau $\rho = 2,7$, *la masse atomique étant égale à 27, nous obtenons les valeurs des paramètres :*

$$\omega_p = 24,85\ 10^{15}\ \text{rad.s}^{-1} \quad ; \quad \lambda_c = 780\ \text{Å} \quad ; \quad \hbar\omega_p = 15,8\ \text{eV}$$

pour le magnésium qui possède 2 électrons de valence et qui présente une densité $\rho = 1,74$ *pour une masse atomique égale à 24,3, nous avons :*

$$\omega_p = 16,63.10^{15}\ \text{rad.s}^{-1} \quad ; \quad \lambda_c = 1168\ \text{Å} \quad ; \quad \hbar\omega_p = 10,6\ \text{eV}$$

Les propriétés d'un gaz d'électrons libres et l'application des équations de Maxwell permettent de situer deux modes de vibration propres des électrons pouvant entrer en résonance avec une perturbation de fréquence caractéristique.

3 - *Plasmon de volume.*

Pour un milieu non chargé, tel qu'un gaz d'électrons libres dans un métal, en l'absence de champ extérieur, il existe dans ce milieu des modes de vibrations propres du gaz d'électrons |78| |79| ; ρ_{lib} étant la densité de charges des porteurs libres, ρ_{pol} la densité des charges de polarisation.

Si ces ondes existent, elles doivent satisfaire la relation

$$\vec{D} = \varepsilon\ \vec{E}$$

$$\text{div } \vec{D} = 0 \qquad 28.$$

puisqu'il n'existe pas de charges libres , comme

$$\text{div } \vec{E} = \rho_{\text{libres}} + \rho_{\text{polarisation}} \qquad 27.$$

on a $$\rho_{\text{libres}} = \left(\frac{\hat{\varepsilon}}{1 - \hat{\varepsilon}} \right) \rho_{\text{polarisation}} \qquad 29.$$

$\rho_{\text{polarisation}}$ n'étant pas nul. Le critère d'existence du mode de vibration propre au gaz d'électrons est que :

$$\hat{\varepsilon}(\omega) = 0 \qquad 30.$$

D'après *IV,25*, la fréquence de résonance entre une onde électromagnétique et les électrons de valence du métal est ainsi donnée par

$$\omega^2_p = \frac{4\pi n e^2}{m}$$ appelée fréquence de plasma.

Les échanges d'énergie entre l'onde incidente et le milieu s'effectuent par quantum $\hbar\omega_p$: appelé plasmon de volume.

4 - Plasmons de surface.

A la surface de séparation entre la couche métallique soumise au rayonnement et le milieu qui la baigne, il peut exister des ondes de surfaces. Par analogie avec les oscillations de volume il existe un mode de vibration des charges de surface que l'on peut expliciter par les relations de Maxwell et les relations de continuité des champs et de l'induction.

Nous avons représenté sur la fig.A.IV,1 la surface de séparation entre les deux milieux A et B, et les directions positives Ox et Oz, cette dernière étant dirigée du milieu B vers le milieu A.

A la surface de séparation les champs électriques (de composantes E_x, 0, E_z) des ondes de surface doivent vérifier les équations d'onde [78] :

$$\left.\begin{aligned} \nabla^2 E - \frac{\varepsilon_A}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0 \quad \text{pour } z > 0 \\ \nabla^2 E - \frac{\varepsilon_B}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0 \quad \text{pour } z < 0 \end{aligned}\right\} \quad 31.$$

En écrivant que le milieu A est le vide et que le milieu B est un gaz d'électrons libres, nous avons |81| |82| :

$$D_z^+ - D_z^- = E^+ - \hat{\varepsilon}(\omega)\, E^- = \sigma_{\text{libres}} \qquad 32.$$

or
$$E_z^+ - E_z^- = \sigma_{\text{libre}} + \sigma_{\text{polarisation}} \qquad 33.$$

Les milieux étant homogènes et non chargés, nous obtenons

$$\sigma_{\text{libres}} = \frac{1 + \hat{\varepsilon}(\omega)}{1 - \hat{\varepsilon}(\omega)} \cdot \sigma_{\text{polarisation}} \qquad 34.$$

σ de polarisation étant différent de zéro, le critère d'existence des ondes de surface d'un gaz d'électrons libres est :

$$\hat{\varepsilon}(\omega) = -1 \qquad 35.$$

D'après *IV,25 et IV,35* la fréquence de résonance entre une onde électromagnétique et les électrons est donnée par :

$$\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}} \qquad 36.$$

III - THEORIE MICROSCOPIQUE QUANTIQUE.

L'image donnée par des électrons libres se déplaçant dans un potentiel constant est remplacée par celle d'électrons évoluant dans un potentiel périodique dû aux ions du réseau cristallin. Ces électrons sont en outre soumis à une interaction coulombienne entre eux. L'hamiltonien du système s'écrit |83| |84| :

$$H = \frac{1}{2m}\sum_i \left| p_i + \frac{e}{c} A(r_i) \right|^2 + \sum_i V(p_i) + H_1 + H_2 \qquad 37.$$

$A(r_i)$ étant le potentiel vecteur (avec le choix de jauge $\nabla \cdot A = 0$)

$V(r_i)$ étant le potentiel périodique dû aux ions

H_1 l'hamiltonien de l'onde libre incidente

H_2 l'hamiltonien de l'interaction coulombienne entre les électrons.

L'expression de la constante diélectrique complexe, obtenue dans le cadre de l'approximation des phases aléatoires (R.P.A.) prend la forme |85| :

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega) &= 1 - \frac{4\pi e^2}{m^2\omega^2} - \frac{4\pi e^2}{m} \sum_j \frac{f_{jj'}^2}{\omega^2 - \omega_{jj'}^2} \\ \varepsilon_2(\omega) &= \frac{2\pi^2 e^2}{m_o} \sum_j \frac{f_{jj'}^2}{\omega_{jj'}} \delta(\omega - \omega_{jj'}) \end{aligned}\right\} 38.$$

où m_o est la masse de l'électron au repos

$f_{jj'}^2$ est la force d'oscillateur pour un électron passant de l'état j à l'état j'

$\delta(\omega - \omega_{jj'})$ est la fonction delta assurant la conservation de l'énergie.

La différence d'énergie entre les états stables et excités est donnée par la relation

$$\hbar(\omega_j - \omega_{j'}) = \Delta E_{jj'}$$

En introduisant dans ces relations le fait que les phénomènes physiques ont un temps de vie fini (τ) résultant de leur collision avec les électrons, impuretés, défauts et phonons existant dans le solide. *PINES* |85| par un procédé dû à *LINDHARD* |86| établit les relations :

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega) &= 1 - \frac{4\pi N e^2}{m^*} \cdot \frac{1}{\omega^2 + \tau^{-2}} - \frac{4\pi e^2}{m_o} \sum_j \frac{f_{jj'}}{\omega^2 - \omega_{jj'}^2} \\ \varepsilon_2(\omega) &= \frac{4\pi N e^2}{m^* \omega\tau} \cdot \frac{1}{\omega^2 + \tau^{-2}} + \frac{2\pi^2 e^2}{m_o} \sum_j \frac{f_{jj'}}{\omega_{jj'}} \delta(\omega - \omega_{jj'}) \end{aligned}\right\} 39.$$

Dans ces relations m^* est la masse effective de l'électron définie par *COHEN* |87| par :

$$\frac{1}{m^*_j} = \frac{1}{m} + \sum_{j'}{}' \frac{1}{m^*_{jj'}} = \frac{1}{h^2} \nabla_k^2 E_{(j')} \qquad 40.$$

la sommation étant effectuée sur toutes les bandes sauf la $j^{ème}$, et $\frac{1}{m^*_{jj'}}$ étant la contribution de la $j'^{ème}$ bande de la masse effective d'un électron de la bande j.

Si m_a est la masse optique apparente des électrons de conduction et N leur nombre par unité de volume, on a ω_a étant la fréquence d'oscillation de plasma observée

$$\left.\begin{aligned} \omega_a^2 &= \frac{4\pi N e^2}{m_a} \\ \text{et} \quad \frac{1}{m_a} &= \frac{1}{4\pi^3 N h^2} \int d^3k \, \frac{1}{3} \nabla_k^2 (E_j) \end{aligned}\right\} \qquad 41.$$

l'expression de la constante diélectrique est alors |87|

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1 &= 1 - \frac{\omega_a^2}{\omega^2} + 4\pi e^2 \sum_{j'} \frac{2}{(2\pi)^3} \int d^3k \sum \frac{1}{m^*} \cdot \frac{1}{\omega^2 - \omega^2_{jj'}} \\ \varepsilon_2 &= \frac{2\pi^2 e^2}{\omega} \sum_{j'} \frac{2}{(2\pi)^3} \int d^3k \sum_j \left| \frac{1}{m^*} \right| \delta(\omega - \omega_{jj'}) \end{aligned}\right\} \qquad 42.$$

ou si n est le nombre de cellules unités par unité de volume et α la polarisabilité d'une cellule unité.

ε_1 s'écrit |87| $\qquad \varepsilon_1 = 1 - \left(\frac{\omega_a}{\omega}\right)^2 + 4\pi n\alpha \qquad 43.$

Dans le cas des métaux suivant à peu près la théorie de l'électron libre,

a) Les expressions (IV,39) et (IV,42) sont plus commodément utilisées sous la forme |88|

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega) &= 1 - \frac{4\pi Ne^2}{m^*} \frac{1}{(\omega^2 + \tau^{-2})} + \delta\,\varepsilon_1(\omega) \\ \varepsilon_2(\omega) &= \frac{4\pi Ne^2}{m^*\,\omega\tau} \cdot \frac{1}{(\omega^2 + \tau^{-2})} + \delta\,\varepsilon_2(\omega) \end{aligned}\right\} \quad 44.$$

entre $\delta\,\varepsilon_1(\omega)$ **et** $\delta\,\varepsilon_2(\omega)$ *il existe une relation de Kramers-Kronig* (I.21)

$$\delta\,\varepsilon_1(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_\omega^\infty d\omega' \, \frac{\delta\,\varepsilon_2(\omega)\omega'}{\omega'^2 - \omega^2} \qquad 45.$$

On reconnait dans les relations (IV,44) une partie correspondant à l'expression de la constante diélectrique (IV,24) obtenue par la théorie de Drude. En séparant cette constante en deux parties, l'une dépendant des porteurs libres, l'autre des effets créés par l'existence du coeur ionique (transitions interbandes), nous pouvons écrire avec EHRENREICH |89|

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \delta\varepsilon_{\text{libre}}(\omega) + \delta\varepsilon_{\text{liée}}(\omega) = \varepsilon_{\text{libre}}(\omega) + \delta\varepsilon_{\text{liée}}(\omega)$$

ou pour un gaz d'électrons parfaitement libres $\delta\varepsilon_{\text{liée}}$ *serait nul et pour un isolant parfait* $\delta\varepsilon_{\text{libre}}$ *serait nul* |90|.

b) L'expression (IV,43) $\varepsilon_1 = 1 - \frac{\omega_a^2}{\omega^2} + 4\pi n\alpha$ *écrite* |87| *sous la forme*

$$A - \frac{B}{\omega^2} \qquad 46.$$

permet à partir de $\varepsilon_1 = n^2 - k^2$ *(donnée par l'expérience) d'évaluer*

- *la polarisabilité par*

$$A = 1 + 4\pi N\alpha \qquad 47.$$

- *la masse optique des électrons de conduction par*

$$B = \frac{4\pi Ne^2}{m_a} \qquad 48.$$

ANNEXE V

INFLUENCES DE LA RUGOSITE DES SURFACES SUR LA VALEUR DE LEUR FACTEUR DE REFLEXION

Nous considérons que les aspérités des surfaces examinées sont petites par rapport aux longueurs d'onde utilisées.

En représentant une portion de la surface (Σ) dans le trièdre de référence Oxyz, où le plan de cote z = 0 est le plan moyen de la surface (surface réelle ramenée à une surface parfaitement plane dont le plan correspond à z = 0), si (x,y,z) sont les coordonnées d'un point M de la surface pris comme repère, (x'y'z') les coordonnées du point courant M' et $\vec{s}$ le vecteur reliant, dans le plan Oxy, les projections de M et M', nous avons |109|, fig. A,V,1. Nous caractérisons la surface rugueuse selon |109| par les paramètres σ et a.

La rugosité σ est définie par $\sigma^2 = \langle z^2 \rangle - \langle z \rangle^2$ 1.

La longueur d'autocorrélation a étant donnée par

$$a^2 = \frac{2}{\sigma^2} \int_0^\infty s.\sigma^2(s).p(s)\, ds \qquad 2.$$

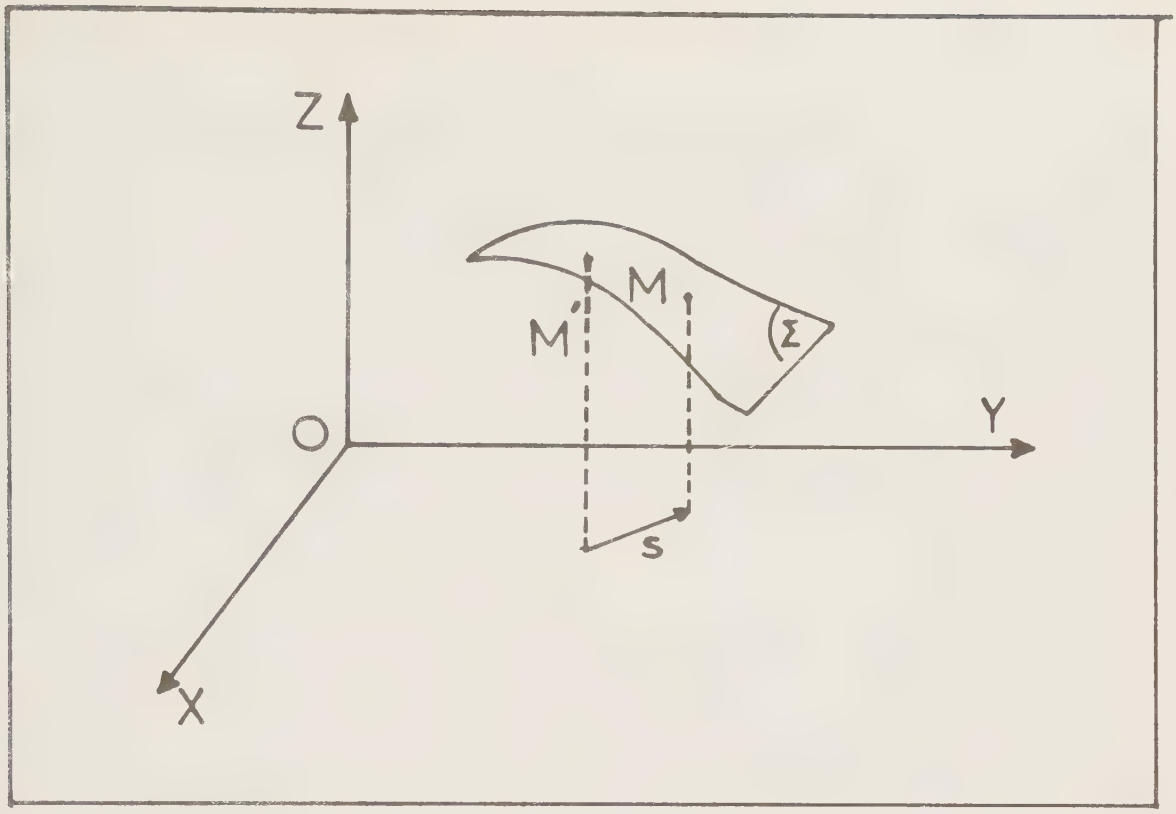
Nous supposons avec *DAVIES* |110| que la distribution des aspérités sur la surface a un caractère statistique, et avec *BENNETT* |111| que la fonction de répartition est gaussienne, nous avons :

$$p(s) = e^{-s^2/a^2} \qquad 3.$$

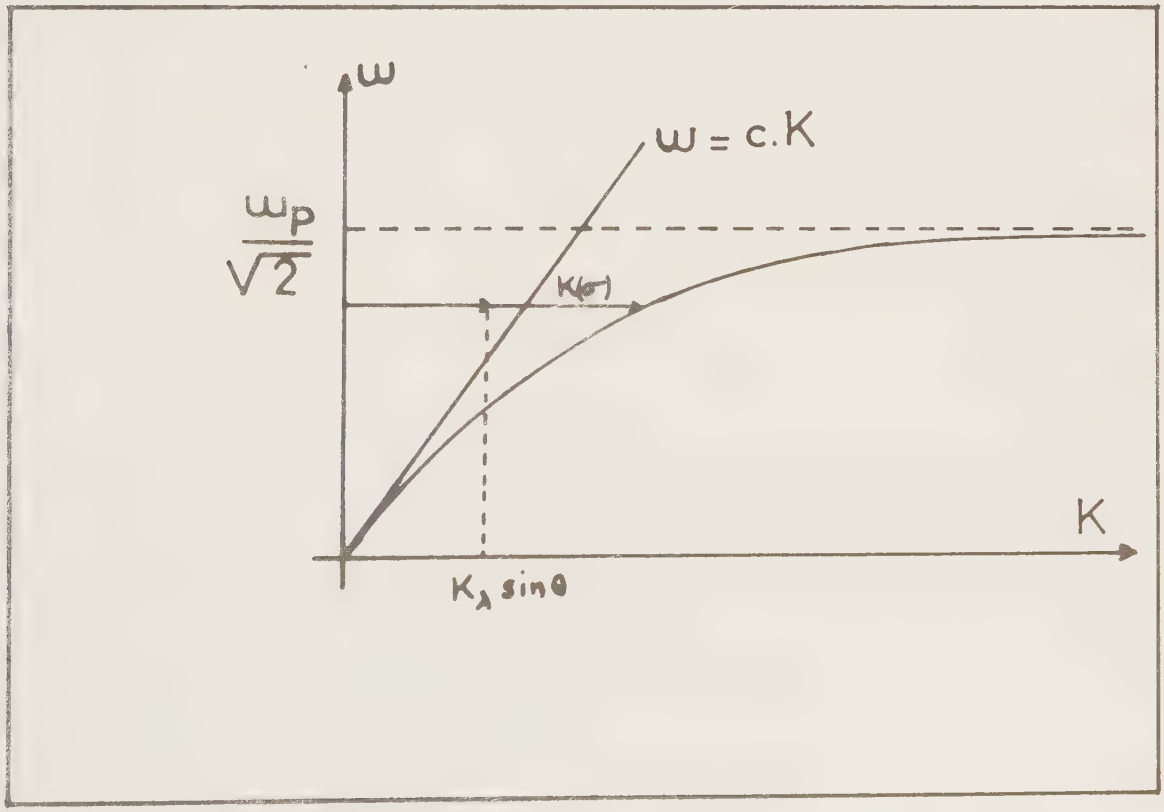
et d'après |27| $\quad m^2 = 2\left(\frac{\sigma}{a}\right)^2$ 4.

avec une pente de la surface au point M donnée par

$$m^2 = \lim_{\vec{S} \to 0} \langle (z' - z/s)' \rangle^2$$



FIG_A,V,1



FIG_A,V,2

Nous allons examiner maintenant comment on peut évaluer la quantité de lumière diffusée ΔR_1 et la diminution ΔR_2 due à l'excitation du plasmon de surface en fonction des paramètres σ et a, de la longueur d'étude (λ) et des paramètres descriptifs des milieux rencontrés par l'onde électromagnétique incidente (ω_p, ε, λ). Nous rappelons les relations principales utilisées en supposant que nous sommes en incidence normale, que le milieu étudié suit parfaitement la théorie de l'électron libre (ce qui est le cas pour l'aluminium et le magnésium), et que les grandeurs σ et a sont plus petites que la longueur d'onde du rayonnement.

I - DIFFUSION.

En tenant compte de la lumière réfléchie spéculairement (R_S) par la surface, de la lumière diffusée (R_d) par cette surface recueillie par le détecteur d'angle d'ouverture $\Delta\theta$, nous pouvons écrire l'expression de *DAVIES* |110| |111| :

$$R_{exp} = R_S + R_d = R_o \left| e^{-(4\pi\sigma/\lambda)^2} + \frac{2^5\pi^4}{m^2} (\sigma/\lambda)^4 (\Delta\theta)^2 \right| \qquad 5.$$

où R_{exp} est la grandeur observée et où R_o serait la valeur du facteur de réflexion pour une surface parfaitement plane. Comme l'angle solide sous lequel la surface sensible de notre détecteur voit la source lumineuse est petit et que les grandeurs σ et a sont bien inférieures aux longueurs d'onde de mesures, le facteur de réflexion peut s'exprimer par la relation :

$$R_{exp} = R_o \left| e^{-(4\pi\sigma/\lambda)^2} \right| \qquad 6.$$

Les droites que nous avons représentées sur la figure 10 indiquent les erreurs auxquelles on peut s'attendre sur les mesures lorsque les dépôts examinés ont une rugosité σ ; elles ont été calculées par *BENNETT* |111| à l'aide de l'expression précédente sous la forme :

$$\mathrm{Log}_{10} \frac{R_o}{R} = ((4\pi\sigma)^2/2{,}303 \; . \; (2/\lambda^2) \qquad 6 \; bis.$$

Ainsi, la quantité de lumière perdue par diffusion sera :

$$\Delta R_1 = R_o - R_{exp} \qquad 7.$$

soit :

$$\Delta R_1 = R_o \left| 1 - e^{-(4\pi\sigma/\lambda)^2} \right| \qquad 8.$$

II - EXCITATION DES ONDES DE SURFACES PAR DES PHOTONS.

Les plasmons de surfaces sont des ondes longitudinales associées aux électrons se déplaçant parallèlement à la surface. S'il existe des ondes de surfaces, elles doivent vérifier |112| |113| les relations *A.IV,31* (rappelées ci-dessous en *9*),

$$\left.\begin{aligned} \nabla^2 E - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} &= 0 \qquad \text{pour } z > 0 \\ \nabla^2 E - \frac{\hat{\varepsilon}}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} &= 0 \qquad \text{pour } z < 0 \end{aligned}\right\} \quad 9.$$

dont les solutions sont de la forme :

$$\left.\begin{aligned} \vec{E} &= e^{i(Kx-\omega t)}\ \vec{A}\ .\ e^{-k_1 z} \qquad \text{pour } z > 0 \\ \vec{E} &= e^{i(Kx-\omega t)}\ \vec{B}\ .\ e^{-k_2 z} \qquad \text{pour } z < 0 \end{aligned}\right\} \quad 10.$$

$\vec{K}$ étant le vecteur de propagation le long de l'axe des x.

avec :

$$\left.\begin{aligned} &\vec{E}\ (E_x,\ 0\ E_z) \\ &k_1 = K^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \\ &k_2 = K^2 - \hat{\varepsilon}\frac{\omega^2}{c^2} \end{aligned}\right\} \quad 11.$$

les milieux (1) et ($\hat{\varepsilon}$) étant homogènes isotropes non chargés (sauf à la surface de discontinuité) nous avons $\nabla\ .\ \vec{E} = 0$. En outre, la composante D_z (εE_z) de $\vec{D}$ et la composante tangentielle du champ (E_x) étant également continues à la surface

(V,10) et $\nabla \cdot \vec{E} = 0$, donnent :

$$\left.\begin{aligned} iK\,A_x - k_1 A_z &= 0 \\ iK\,B_x - k_2 B_z &= 0 \end{aligned}\right\} \quad 12.$$

et

$$\left.\begin{aligned} E_{A,x} &= E_{B,x} \\ E_{A,z} &= \varepsilon E_{B,z} \end{aligned}\right\} \quad 13.$$

soit en combinant *12* et *13* :

$$\varepsilon = \frac{k_2}{k_1} = - \frac{K^2 - \varepsilon \frac{\omega^2}{c^2}}{K^2 - \frac{\omega^2}{c^2}} \qquad 14.$$

La relation de dispersion pour le vecteur d'onde |114| décrivant les propriétés des ondes que nous avons supposé se déplacer à la surface, s'écrit :

$$K = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon+1}\right)^{1/2} \qquad 15.$$

elle est représentée sur la figure *A.V,2.*

Dans un gaz d'électrons libres $\varepsilon \simeq 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}$ est une grandeur < 0 pour $\omega < \omega_p$ (ou $\lambda > \lambda_c$). Pour qu'une onde de surface existe réellement, il faut que K soit réel, ce qui donne pour cas limite un vecteur d'onde K tendant vers l'infini quand ε tend vers - 1. (Pour cette limite $\omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}}$, cette valeur représente la borne supérieure des fréquences pour lesquelles on peut observer l'excitation d'un plasmon car pour $\varepsilon_1 > -1$ K devient imaginaire. D'après la figure *A.V,2* le vecteur d'onde des ondes de surfaces associées au plasmon, est plus grand que $\frac{\omega}{c}$ |115|, la vitesse de phase de ces ondes est donc inférieure à celle de la lumière. Leur excitation par une onde transverse arrivant perpendiculairement à la surface ne peut avoir lieu. Par contre, des rugosités superficielles peuvent moduler la vitesse de l'onde incidente et autoriser un couplage résonant. Ces défauts superficiels introduisent un vecteur moment K_σ tel

que |116| :

$$\vec{K}_\sigma + \vec{K}_\lambda = \vec{K}_{sp} \qquad 16.$$

$\vec{K}_{sp}$ étant le vecteur d'onde du plasmon de surface

$\vec{K}_\lambda$ étant le vecteur d'onde de l'onde incidente

$\vec{K}_\sigma$ étant le vecteur d'onde = $\frac{2\pi \cdot n}{a}$ introduit par les aspérités de surface, (a le "pas" des défauts et n un entier quelconque).

Ces ondes de surface ont un caractère non radiatif, leur mise en évidence dans les mesures de facteur de réflexion s'exprime par une absorption d'énergie (excitation primaire d'un électron) et une décroissance du pouvoir réflecteur dans la zone de résonance. Suivant *RITCHIE* |117|, l'interaction entre un champ électromagnétique incident et des électrons s'écrit :

a) dans le milieu de constante diélectrique $\hat{\varepsilon}$ (où la vitesse de propagation de la perturbation est β, où $\vec{A}$ est le potentiel vecteur, où n_o est la densité des électrons non perturbés et où $\vec{\nabla}\,\vec{A} = 0$ correspond au choix de jauge |118|

$$\left.\begin{aligned} \frac{\partial \psi}{\partial t} &= \frac{-e}{m}\,\phi + \frac{\beta^2}{n_o}\,n \\ \nabla^2 - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\,\vec{A} &= \frac{1}{c}\,\vec{\nabla}\,\frac{\partial \phi}{\partial t} - \frac{4\pi e n_o}{c}\,(\vec{\nabla}\psi - \frac{e}{me}\,\vec{A}) \\ \nabla^2 \phi &= 4\pi e n \\ \frac{\partial n}{\partial t} &= n_o \nabla^2 \psi \end{aligned}\right\} \quad 17.$$

b) dans le vide où baigne la surface examinée

$$\left.\begin{aligned} (\nabla^2 - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2})\,\vec{A} &= \frac{1}{c}\,\vec{\nabla}\,\frac{\partial}{\partial t}\,\phi \\ \nabla^2 \phi &= 0 \end{aligned}\right\} \quad 18.$$

Dans ces relations e, m sont les charge et masse au repos de l'électron, ϕ le potentiel scalaire électrique, n la densité électronique, ψ la variation de potentiel dans l'état perturbé, $\vec{A}$ le potentiel vecteur.

Si ω_{sp} et K (identique à K_{sp}) sont la fréquence angulaire et le vecteur d'onde du plasmon de surface, ω_p la fréquence de plasma de volume (*A.IV,25*), l'équation de dispersion de celui-ci est |118|

$$\omega_{sp}^2 \left| (K^2c^2 + \omega_p^2 - \omega_{sp}^2)^{1/2} + (K^2c^2 - \omega_{sp}^2)^{1/2} \right| (K^2\beta^2 + \omega_p^2 - \omega_{sp}^2)^{1/2} = \qquad 19.$$

$$\omega_p^2 \left| K^2c\beta + (K^2c^2 - \omega_{sp}^2)^{1/2} (K^2\beta^2 + \omega_p^2 - \omega_{sp}^2)^{1/2} \right|$$

avec pour cas limite quand $\beta \to 0$

$$\omega_{sp}^2 = \frac{\omega_p^2}{2} + c^2K^2 - \left(\frac{\omega_p^2}{4} + c^4K^4\right)^{1/2} \qquad 20.$$

qui peut être réduite sous la forme vue en (*15*).

Quand le métal est bordé par un diélectrique de constante diélectrique η l'équation de dispersion précédente devient

$$K^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \left(\frac{\eta\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \eta}\right) \qquad 21.$$

La fréquence de résonance se met alors sous la forme

$$\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \eta}} \qquad 15bis.$$

Comme nous l'avons indiqué au début de ce paragraphe, l'interaction entre les ondes de surfaces et le rayonnement incident est favorisée par les défauts superficiels des dépôts, et nous venons de voir que, suivant la valeur de la constante diélectrique dans laquelle baigne la surface examinée, la longueur d'onde de résonance se déplace. La valeur de $\Delta R_2(\omega)$ correspondant à la diminution du facteur de réflexion a été évaluée par *RITCHIE* |119| à partir du calcul de la probabilité $P_K(\omega)$, par photon incident d'énergie $\hbar\omega$ donnée, de création d'un plasmon de surface de même vecteur d'onde. En intégrant $P_K(\omega)$ sur le domaine de fréquence (0 - ∞) *RITCHIE* aboutit à

$$\frac{\omega_p}{\sqrt{2}} < \Delta R_2 > = \int_0^\infty d\omega \sum_K P_K(\omega) = \frac{1}{c} \int_0^\infty dK\omega_K^2 \cdot \frac{\Gamma^3\nu^3K^3(\Gamma\ \nu).I_K}{\Gamma-\nu(\Gamma_\nu-K^2)^3+K^4(\Gamma-\nu)^2(\Gamma^2-\nu^2)} \qquad 22.$$

où

$$\left.\begin{aligned} \Gamma &= \left|K^2 + (\omega_p^2 - \omega_K^2)/\beta^2\right|^{1/2} \\ \nu &= \left|K^2\ (\omega_p^2 - \omega_K^2)/c^2\right|^{1/2} \\ I_K &= \rho^2 g(k) \end{aligned}\right\} \quad 23.$$

où $g(k) = 2\pi \int_0^\infty J_o(K_s)\ G(s)\,s\,ds$ est la transformée de *BESSEL* de G(s).

G(s) est la fonction d'autocorrélation pour les variations de hauteurs des défauts superficiels. En choisissant une loi de répartition gaussienne et en écrivant que

$$\left.\begin{aligned} \alpha &= \frac{\omega}{\omega_p} \\ \gamma &= \alpha\left|(1-\alpha^2)/1-2\alpha^2\right|^{1/2} \\ H &= \omega_p \cdot \frac{\sigma}{c} \\ Q &= \omega_p \cdot \frac{a}{c} \\ F(\alpha) &= \pi Q^2 H^2 (1-\alpha^2)^{-1/2} \gamma^5 \end{aligned}\right\} \quad 24.$$

l'expression de $\langle \Delta R_2 \rangle$ en fonction de ω est représentée par

$$\langle \Delta R_2 \rangle\ (\omega) = F(\alpha) \cdot e^{-\frac{\gamma^2 Q^2}{4}} \qquad 25.$$

En pratique, à l'aide de cette dernière relation on peut évaluer comme le représente la figure A,V,3, la longueur d'autocorrélation a en fonction de $\frac{\omega_m}{\omega_p} = \alpha_m$ et comme le montre la figure A,V,4, la rugosité moyenne en fonction de la valeur maximum de ΔR_2 et de α, (ω_m correspondant à la longueur d'onde pour laquelle apparait ΔR_2 maximum).

Ainsi, figure A,V,3, si $\alpha_m = 0{,}66$ l'ordonnée du point de la courbe $Q = f(\alpha_m)$ permet d'évaluer la longueur d'autocorrélation à 310 Å. De même, figure A,V,4, si $\alpha_m = 0{,}66$ l'ordonnée du point de la courbe $H = f(\alpha_m)$ pour un ΔR_2 maximum de 10 % montre que la rugosité du dépôt est $\sigma = 20$ Å.

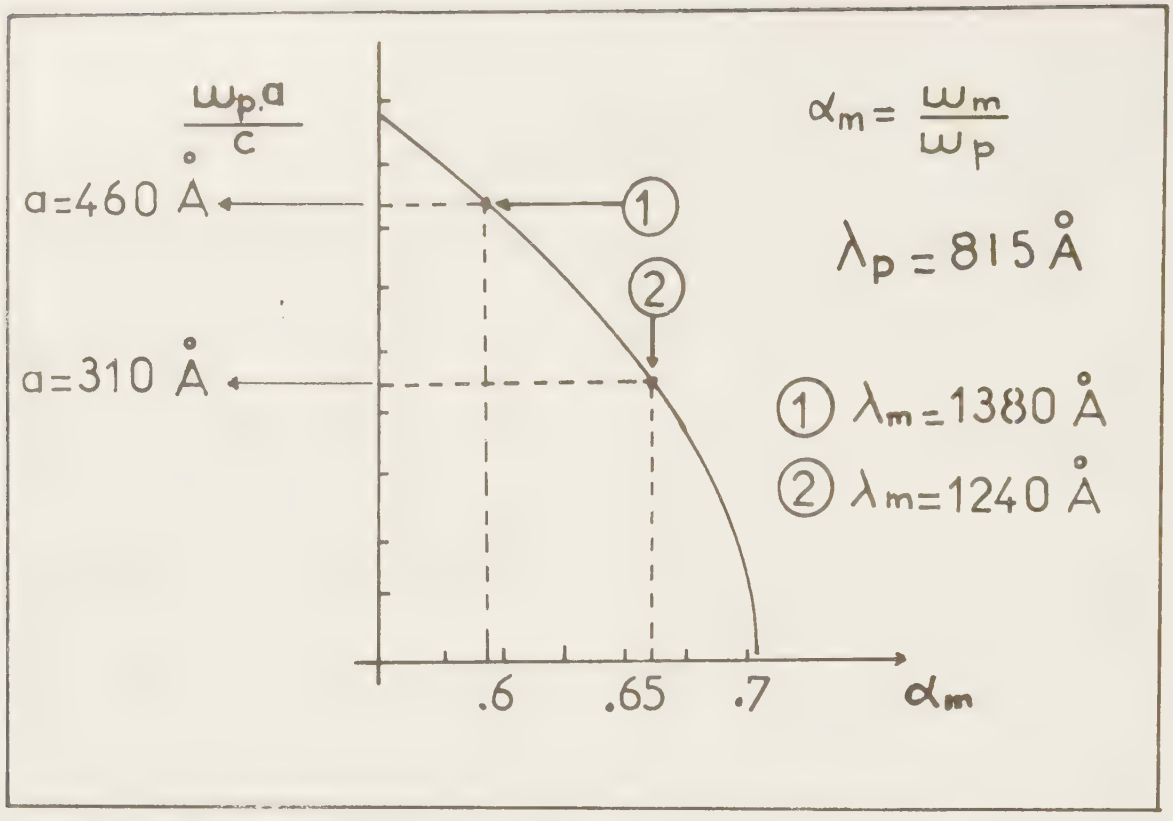


FIG-A,V,3

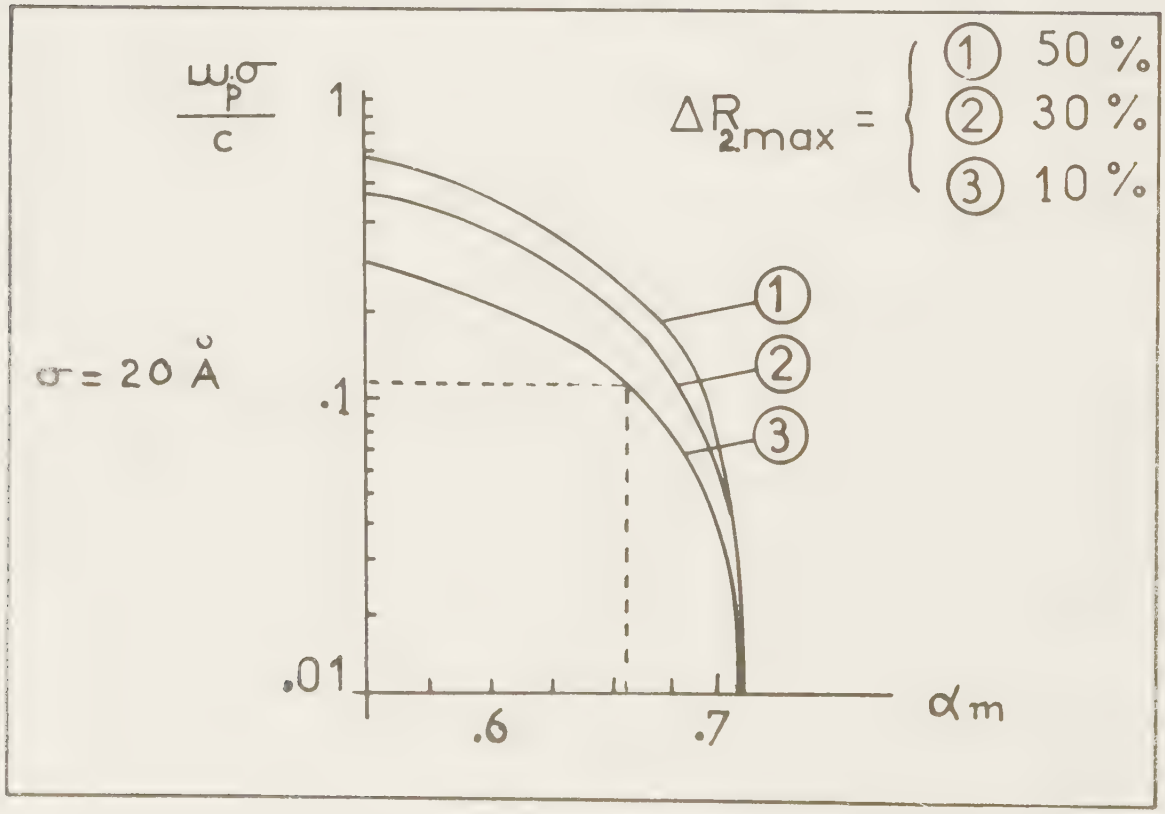


FIG-A,V,4

ANNEXE VI

```
C     PROGRAMME POUR TROUVER R A PARTIER DE R(O) EN FONCTION DE SIGNA
      DIMENSION SIGMA(30),AMBDA(100),RO(100)
      READ 1,KMAX,IMAX
    1 FORMAT(2I5)
      READ2,(RO(I),I=1,IMAX)
    2 FORMAT(13F6.4)
      READ 3,SIGMO,PAS
    3 FORMAT(2F5.0)
      READ 4,AMBDO,QAS
    4 FORMAT(2F6.0)
      PUNCH5
    5 FORMAT(15X,28HCALCUL DE R A PARTIR DE R(O)//)
      SIGMA(1)=SIGMO
      AMBDA(1)=AMBDO
      DO 10 K=1,KMAX
      PUNCH6,SIGMA(K)
    6 FORMAT(5X,8HSIGMA =,F4.0)
      PUNCH7
    7 FORMAT(6X,6HLAMBDA,10X,1HR)
      DO 20 I=1,IMAX
      PAR=(4.*3.1415926*SIGMA(K)/AMBDA(I))**2
      REF=RO(I)**(-PAR)
      PUNCH8,AMBDA(I),RO(I),REF
    8 FORMAT(6X,F6.0,2(8X,F5.3))
   20 AMBDA(I+1)=AMBDA(I)+QAS
   10 SIGMA(K+1)=SIGMA(K)+PAS
      END
```

ANNEXE VII

```
C     PROGRAMME POUR TROUVER LES VARIATIONS DE R DUES A LA RUGOSITE
C     AMBDA(J) EST LA LONGUEUR D ONDE DE CALCUL
C     SIGMA EST LA RUGOSITE
C     AUTO EST LA LONGUEUR D AUTOCORRELATION
C     DETAR EST LA VARIATION DE R
      DIMENSION SIGMA(30),AUTO(20),AMBDA(100)
      READ 1,AMBP
    1 FORMAT(F5.0)
      READ 2,KMAX,IMAX,JMAX
    2 FORMAT(3I5)
      READ 3,SIGMO,PAS
      READ 3,AUTA,QAS
      READ 3,AMBDO,RAS
    3 FORMAT(2F10.0)
      PUNCH 4
    4 FORMAT(15X,26HCALCUL DES VARIATIONS DE R //)
      SIGMA(1)=SIGMO
      AUTO(1)=AUTA
      AMBDA(1)=AMBDO
      A=(2.*3.1415926)/AMBP
      A2=A**2
      A4=A2**2
      DO 10 K=1,KMAX
      PUNCH 5,SIGMA(K)
    5 FORMAT(5X,7HSIGMA =,F4.0)
      DO 20 I=1,IMAX
      PUNCH 6,AUTO(I)
    6 FORMAT(10X,6HAUTO =,F5.0)
      PUNCH 7
    7 FORMAT(5X,6HLAMBDA,6X,5HDETAR)
      DO 30 J=1,JMAX
      OMEG=AMBP/AMBDA(J)
      OMEG2=OMEG**2
      SIG2=SIGMA(K)**2
      B=OMEG2*(1.-OMEG2)/(1.-2.*OMEG2)
      B2=B**2
      AUTO2=AUTO(I)**2
      EX=A2*AUTO2*B/4.
      AX=EXP(-EX)
      DET=3.1415926*SIG2*AUTO2*A4*B2*OMEG/SQRTF(1.-2.*OMEG2)
      DETAR=DET*AX
      PUNCH 8,AMBDA(J),DETAR
    8 FORMAT(6X,F7.0,4X,F8.6)
   30 AMBDA(J+1)=AMBDA(J)+RAS
      PUNCH 9
    9 FORMAT(74(1H*))
   20 AUTO(I+1)=AUTO(I)+QAS
      PUNCH 50
   50 FORMAT(74(1H*))
   10 SIGMA(K+1)=SIGMA(K)+PAS
      END
```

BIBLIOGRAPHIE.

|1| M. BORN et E. WOLF, *Principles of Optics*, p. 52 (Pergamon Press 1959).

|2| G. BRUHAT, *Optique*, p. 404 (Masson, 6è édition, 1965).

|3| A. VASICEK, *Optics of Thin Films*, (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1960).

|4| F. SEITZ, *Théorie Moderne des Solides*, p. 697 à 749 (Masson, 1949).

|5| F. ABELES, *Thèse*, Paris (Annales de Physique, 12è série, t. 5, sept. 1950).

|6| R. TOUSEY, *J. Opt. Soc. Am.*, 29, 235, 1939.

|7| K. ISHIGURO, T. SASAKI, S. NOMURA, *Physics*, p. 208 - 215, 1961

|8| L. WARD et A. NAG, *Applied Physics,(British Jl)*, vol. 3, p.462,1970

|9| W.R. HUNTER, *Rapport N.A.S.A.*, 7140, PPR 4/65, 1965.

|10| H.W. BODE, *Network Analysis and Feedback Amplifier Design* (New-York) 335, 1945.

|11| D.M. ROESSLER, *British Journal of Applied Physics*, Vol. 16, p. 1359 à 1366, 1965.

|12| T.S. MOSS, *Optical Properties of Semi-Conductors* (Butterworths Scientific Publications, 1959).

|13| D.M. ROESSLER, *British Journal of Applied Physics*, vol. 16, p. 1313, 1965.

|14| P.O. NILSSON et L. MUNKBY, *Phys. Kondens. Materie*, t. 10, 290, 1969.

|15| G.H.C. FREEMAN, *Optica Acta*, t. 11, n° 3, 219, 1964.

|16| H. MURMANN, *Z. Physik*, 80, 161, 1933.

|17| B. BATES et D.J. BRADLEY, *J. Opt. Soc. Am.*, 57, 4, 481, 1967.

|18| J.P. MATHIEU, *Optique*, (Sédes, t. 1, ch. 3, p. 70, 1965).

|19| G. BRUHAT, *Optique*, (Masson, 6è édition, p. 400, 1965).

|20| W.R. HUNTER, *J. Opt. Soc. Am.*, 54, 1, 15, 1964.

|21| W.R. HUNTER, *Le Journal de Physique*, 25, 154, 1964.

|22| I.C. SUTHERLAND, R.N. HAMM, J.R. STEVENSON, E.T. ARAKAWA, *O.R.N.L.-T.M.*, 1776, 1967.

|23| R.P. MADDEN, L.R. CANFIELD, G. HASS, *J. Opt. Soc. Am.*, 53, 620, 1963.

|24| F. ABELES, *J. Opt. Soc. Am.*, 47, 6, 473, 1956.

|25| P. BOUSQUET, *Journal de Physique*, 25, 1-2, 50, 1964.

|26| H.E. BENNETT, *Optics of Thin Films* (ed. G. HASS, Academic Press New-York and London, vol. 4).

|27| H.E. BENNETT, J.O. PORTEUS, *J. Opt. Soc. Am.*, 53, 12, 123, 1963.

|28| J.L. STANFORD , H.E. BENNETT, J.M. BENNETT, E.J. ASHLEY, E.T. ARAKAWA, *Bull. Am. Phys. Soc.*, 13, 989, 1968.

|29| Mme S. ROBIN, *REv. d'Optique*, 33, 193, 1954.

|30| J. ROMAND, B. VODAR, *Rev. d'Optique*, 39, 4, 167, 1960.

|31| V.E. LUSCHER, *Chimia*, 13, 9, 277, 1959.

|32| L. DUNKELMANN, W.B. FOWLER, J. HENNES, *Applied Optics*, 1, 6, 695, 1962

|33| Mme S. ROBIN, S. ROBIN, B. VODAR, *Journal de Physique et Radium*, 13, 671, 1952.

|34| A. DAUDE, S. ROBIN, *Revue de Physique Appliquée*, 1, 120, 1966.

|35| A. DAUDE, S. ROBIN, *Le Vide*, 125, 405, 1966.

|36| J.C. LEMONNIER, M. PRIOL, A. QUEMERAIS, Mme S. ROBIN, *J. Phys. Appl.* 25, 79 A, 1964.

|37| M. PRIOL, A. DAUDE, Mme S. ROBIN, *Le Vide*, 123, 244, 1966.

|38| M. BRUNET, C. JULLIOT, J. VASSEUR, *Journal de Physique et Radium*, 24, 53 A, 1963.

|39| A.F. TIMOTHY, J.C. TIMOTHY, A.P. WILMORE, *Applied Optics*, 6, 1319 1967.

|40| N.N. AXELROD, *Review of Scient. Instr.*, 35, 7, 918, 1964.

|41| J.L. BOUCHAREL, A. DAUDE, A. QUEMERAIS, S. ROBIN, *Revue de Physique Appliquée*, 5, 287, 1970.

|42| PHILLIPS GRANVILLE *(Notice Technique, Vanne U.H.V.* 1964).

|43| A. DAUDE, S. ROBIN, *Colloque International sur l'Ultravide*, Saclay, Paris, p. 181, juin 1967.

|44| VARIAN S.A. *(Notice Technique, quadrupôle*, 1965).

|45| L. HEROUX, H. E. HINTERREGER, *R.S.I.*, 31, 1, 281, 1960.

|46| Laboratoire des Couches Minces, C.N.R.S. Grenoble, *(Notice Technique - Mesures d'épaisseur par quartz)*.

|47| R.I. GARROD, *Australia Journal of Technology*, vol. XIX, n° 2, p. 47 1963.

|48| J. COLOMBANI, *Industries Atomiques*, 9, 10, 70, 1961.

|49| A. DAUDE, *D.E.S.* Faculté de RENNES, 1965.

|50| J. DELAFOSSE, G. MONCODIN, *Les calculs de la technique du Vide*, (Ed. S.F.I.T.V., Vesoul, 1961).

|51| M. PRIOL, A. QUEMERAIS, S. ROBIN, *Optica Acta*, 17, 8, 603, 1970.

|52| P. LOSTIS, *Revue d'Optique*, 38, 1, 17 , 1959.

|53| G. NOMARSKI, *J. Physique*, 16, 9, 1955.

|54| P. BOUSQUET, L. CAPELLA, A. FORNIER, J. GONELLA, *Appl. Optics*, 8, 6, 1229, 1969.

|55| B. FEUERBACHER, *Rapport Technique, D.E.S.Y.*, 68/27, 13, mai 1968

|56| P.H. METZGER, *J. Phys. Chem. Solids*, 26, 1879, 1965.

|57| J.A.R. SAMSON, *Techniques of Vacuum Ultraviolet Spectroscopy*, (Ed. J. Wiley et Sons, N.Y. 1967).

|58| N.F. MOTT, H. JONES, *Theories of the properties of Alloys*, (Dover Public, N.Y. 1958).

|59| H.E. BENNETT, J.M. BENNETT, *Optical Properties and Electronic Structure of Metals and Alloys* (ed. ABELES, North-Holland, Amsterdam, p. 175, 1966).

|60| F. TOOTS, H.A. FOWLER, L. MARTON, *Phys. Rev.* 172, 670, 1968

|61| A. DAUDE, M. PRIOL, S. ROBIN, *Comptes Rendus Ac. Sc. Paris*, 263, 1178, série B, 1966.

|62| M. PRIOL, Mme S. ROBIN, *Some Aspects of Vacuum Ultraviolet Radiation Physics* (à paraître, Pergamon Press).

|63| E.T. HUTCHESON, G. HASS, J.K. COULTER, *Optics Communications*, 3, 4, 213, 1971.

|64| H.E. BENNETT, M. SILVER, E. ASHLEY, *J. Opt. Soc. Am.* 53, 9, 1089, 1963.

|65| L. HOLLAND, *Vacuum Deposition of thin film* (J. Wiley and Sons, N.Y. 1958).

|66| B.P. FEUERBACHER, W. STEINMANN, *Optics Communications*, 1, 2, 81, 1969.

|67| A. DAUDE, M. PRIOL, S. ROBIN, *Comptes Rendus Ac. Sc. Paris*, 264, 1489, série B, 1967.

|68| G.B. SABINE, *Phys. Rev.* 55, 1064, 1939.

|69| M. PRIOL, A. DAUDE, Mme S. ROBIN, *Comptes Rendus Ac. Sc. Paris*, 264, 935, série B, 1967.

|70| A. DAUDE, A. SAVARY, G. JEZEQUEL, *Optics Communications*, 1, 5, 237, 1969.

|71| T.F. GESELL, E.T. ARAKAWA, *Rapport O.R.N.L.*, 2617, 1971.

|72| R.W. DITCHBURN, G.H. FREEMAN, *Proc. of the Roy. Soc.*, 294, 20, 1966.

|73| R. LAVILLA, H. MENDLOWITZ, *Phys. Rev. Let.* 9, 149, 1962.

|74| H. KRÖGER, D.H. TOMBOULIAN, *Phys. Rev.*, 130, 152, 1963.

|75| P. DRUDE, *The Theorie of Optics*, (Dover Publ. N.Y., 1959).

|76| C. KITTEL, *Introduction à la physique de l'état solide*, vol. I, (Dunod, Paris, 1958).

|77| C. KITTEL, *Introduction à la physique de l'état solide*, vol. II, (Dunod, Paris, 1970).

|78| R.A. FERRELL, *Phys. Review*, 111, 5, 1214, 1958.

|79| H. FRÖHLICH, H. PELTZER, *Proc. Phys. Soc.* A 68, 525, 1955.

|80| R.H. RITCHIE, H.B. ELDRIDGE, *Phys. Rev.*, 126, 1935, 1962.

|81| U. FANO, *J. Opt. Soc. Am.*, 31, 213, 1941.

|82| J. ENDRIZ, *Tech. Rep.* n° 5207-3, (Stanford University), Juin 1970.

|83| D. PINES, D. BOHM, *Phys. Rev.* 92, 609, 1953.

|84| P. NOZIERES, D. PINES, *Phys. Rev.*, 109, 3, 762, 1958.

|85| D. PINES, *Elementary excitation in solids* (N.A. Benjamin Inc. New-York, p. 203, 1963).

|86| LINDHARD, *J. Kgl. Dauske Videnskab. Selskab. Mat. Fys. Medd.* 28,8, 1954.

|87| M.H. COHEN, *Philos. Magazine*, 3, 31, 762, 1958.

|88| U.S. WHANG, E.T. ARAKAWA, T.A. CALCOTT, *J. Opt. Soc. Am.*, 61, 6, 740, 1971.

|89| H.E. EHRENREICH, H.R. PHILIPP, *Phys. Rev.*, 128, 4, 1622, 1962.

|90| H.E. EHRENREICH, *Optical Properties of Solids* (Ed. Tauc, A.C. PRESS N.Y. p. 106, 1966).

|91| H. RAETHER, *Helvetica Physica Data*, 41, 617, 1112, 1968.

|92| A. DAUDE, A. SAVARY, G. JEZEQUEL, Mme S. ROBIN, *Comptes Rendus Ac. Sc. Paris*, 269, 901, série B, 1969.

|93| A. DAUDE, M. PRIOL, Mme S. ROBIN, S. ROBIN, *Second Colloq. of thin films*, Budapest p. 287 (1967).

|94| J.C. SUTHERLAND, E.T. ARAKAWA, R.N. HAMM, *J. Opt. Soc. Am.*, 57, 5, 645, 1967.

|95| J.L. STANFORD, H.E. BENNETT, *Applied Optics*, 8, 12, 2556, 1969.

|96| A. DAUDE, A. SAVARY, S. ROBIN, *Congrès international sur les couches minces*, Cannes, p. 552, oct. 1970.

|97| R.E. VESHE, E.T. ARAKAWA, *O.R.N.L.-T.M.* 2240, 1968.

|98| H. MENDLOWITZ, *Proc. of Phys. Society*, 75, 663, 1960.

|99| H. MAYER, B. HIETEL, *Optical properties and electronic structure of metals and alloys*, (Ed. Abéles, North-Holland, p. 47, 1966).

|100| H. EHRENREICH, H.R. PHILIPP, B. SEGALL, *Phys. Review*, 132, 5, 1918, 1963.

|101| W.A. HARRISON, *Phys. Review*, 147, 467, 1966.

|102| N.W. ARSCHOFF, K. STURM, *Phys. Review*, 3, 6, 1898, 1971.

|103| F. ABELES, *Soft X Ray Band Spectra*, (Ed. D.J. Fabian, Academic Press (N.Y.), p. 191, 1968).

|104| C.J. POWELL, J.B. SWANN, *Phys. Review*, 118, 640, 1960.

|105| H. RAETHER, *Springer tracts in modern physics*, (Verlag Berlin, V. 38, 1965).

|106| A.P. LENHAM, D.M. TREHERNE, A.J. WOODALL, *Optical preperties and electronic structure of metals and alloys*. North Holland, Amsterdam, 1966.

|107| C.J. POWELL, *J. Opt. Soc. Am.*, 60, 2, 214, 1970.

|108| C.J. POWELL, *J. Opt. Soc. Am.*, 60, 1, 78, 1970.

|109| J.O. PORTEUS, *J. Opt. Soc. Am.*, 53, 12, 1394, 1963.

|110| H. DAVIES, *Proc. Inst. Elec. Engers. (London)*, 101, 1953.

|111| H.E. BENNETT, *J. Opt. Soc. Am.*, 53, 12, 1389, 1963.

|112| W. STEINMANN, *Phys. Stat. Solid*, 28, 437, 1968.

|113| J.J. COWAN, E.T. ARAKAWA, R.H. RITCHIE, *O.R.N.L.-T.M*, 2613, Nov. 1969.

|114| R.H. RITCHIE, H.B. ELDRIGE, *Phys. Review*, 126, 1935, 1962.

|115| H. RAETHER, *Journal de Physique*, Colloque C_1. T 31, n° 4 (supplément), 1970.

|116| D. BEAGLEHOLE, *I.E.E.E. Trans. Elec. Devi.* vol. ED 17, 3, 240, 1970.

|117| R.H. RITCHIE, R.E. WILEMS, *Phys. Review*, 178, 1, 372, 1969.

|118| J.M. ELSON, R.H. RITCHIE, *Phys. Letters*, 33 A, 4, 255, 1970.

|119| R.H. RITCHIE, R. CROWELL, *J. Opt. Soc. Am.*, 60, 6, 794, 1970.

|120| R.G. JOHNSTON, L.R. CANFIELD, R.P. MADDEN, *Applied Optics*, 6, 4, 719, 1967.

|121| J.M. BENNETT, R.J. KING, *Applied Optics*, 9, 1, 236, 1970.

|122| H.E. BENNETT, *Phys. Review*, 165, 755, 1968.

|123| J.G. ENDRIZ, W.E. SPICER, *Phys. Review*, B, 4, 12, 4144, 1971.

|124| A. DAUDE, A. SAVARY, S. ROBIN, *III International conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics*, Tokyo, 31 p A1-4, August 30, September 2, 1971.

|125| J.L. STANFORD, H.E. BENNETT, J.M. BENNETT, E.J. ASHLEY, E.T. ARAKAWA, *Bul. of the Am. Phys. Soc.*, 2, 989, 1969.

|126| R. CANFIELD, G. HASS, J.E. WAYLONIS, *Applied Optics*, 6, 1, 45, 1966.

|127| P. MADDEN, *Physics of thin films*, (Ed. G. Hass, Academic Press, N.Y., Tome 1, p. 156, 1963).

|128| H. RAETHER, *Surface Science*, 8, 233, 1967.

|129| D.W. ANGEL, W.R. HUNTER, R. TOUSEY, G. HASS, *J. Opt. Soc. Am.*, 51, 913, 1961.

|130| A.P. BRADFORD, G. HASS, J.F. OSANTOWSKI, A.R. TOFT, *Applied Optics*, 8, 6, 1183, 1969.

|131| M.R. ADRIAENS, B. FEUERBACHER, *Applied Optics*, 10, 4, 958, 1971.

|132| W.R. HUNTER, J.F. OSANTOWSKI, G. HASS, *Applied Optics*, 10, 3, 540, 1971.

|133| Mlle D. FABRE, J. ROMAND, B. VODAR, *Journal de Physique*, 25, 55, 1964.

|134| D. FABRE, *Thèse*, Paris, 1964.

|135| A. DAUDE, A. SAVARY, A. SEIGNAC, S. ROBIN (à paraître).

|136| J.M. ELSON, R.H. RITCHIE, *Phys. Review, B, Solid State*, 4, 12, 4129, 1971.

V U :

Le Président de la Thèse

S. ROBIN

V U :

Le Directeur de Thèse

S. ROBIN

VU ET APPROUVE

RENNES, le 21 Février 1972

Le Directeur de l'U. E. R.
"Structure et Propriétés de la Matière",

D. GRANDJEAN.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER N° 90 A

RENNES, le 6 Mars 1972

Le Président de l'Université de RENNES,

C. CHAMPAUD.